

École doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

**Doctorat ParisTech**

**T H È S E**

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**l'École nationale supérieure des mines de Paris**

**Spécialité Sciences et génie des matériaux**

*présentée et soutenue publiquement par*

**Mi HE**

le 19 novembre 2012

**Caractérisation du comportement à rupture des alliages de zirconium de la gaine du crayon combustible des centrales nucléaires dans la phase post-trempe d'un APRP (Accident de Perte de Réfrigérant Primaire)**

Directeur de thèse : **Jacques BESSON**

**Jury**

**Dr. Jean-Marc CLOUE**, Ingénieur senior, AREVA NP Lyon

**Dr. Yann MONERIE**, Ingénieur-chercheur, LEC, IRSN

**Dr. Jin Bo BAI**, Directeur de recherche CNRS, LMSSMat, Ecole Centrale Paris

**Dr. Valérie VANDENBERGHE**, Ingénieur-chercheur, SEMI, CEA

**Mme Aurore PARROT**, Ingénieur-chercheur, MMC, EDF R&D

**Dr. Jacques BESSON**, Directeur de recherche CNRS, CdM, ENSMP

**Pr. Philippe PILVIN**, Professeur, LIMATB, Université de Bretagne-Sud

Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Examineur

**T  
H  
È  
S  
E**



# Table des matières

Table des matières .....	i
1 Introduction .....	1
1.1 Contexte.....	1
1.1.1 Gaine de crayon de combustible.....	1
1.1.2 Accident de perte de réfrigérant primaire (APRP) .....	2
1.2 Caractérisation de la ductilité de la gaine oxydée à haute température.....	4
1.2.1 Critères de sûreté liés à l'APRP établis en 1973 .....	4
1.2.2 Etudes récentes .....	5
1.2.3 Méthodes de caractérisation .....	6
1.2.4 Problématique.....	7
1.3 Objectif et démarche de la thèse.....	8
1.4 Plan de la thèse .....	9
2 Oxydation à haute température des gaines en Zircaloy-4.....	11
2.1 Alliages de zirconium.....	11
2.2 Oxydation à haute température des gaines en Zy-4.....	13
2.2.1 Processus d'oxydation .....	13
2.2.2 Cinétique d'oxydation .....	14
2.2.3 Equivalent Cladding Reacted (ECR).....	16
2.2.4 Microstructure de la phase ex- $\beta$ : effet de la vitesse de refroidissement....	16
2.3 Essai d'oxydation à haute température des gaines en Zy-4 détendu .....	18
2.3.1 Matériau de l'étude.....	18
2.3.2 Programme d'essai .....	19
2.3.3 Réalisation de l'essai d'oxydation.....	19
2.3.4 Résultats de l'essai d'oxydation .....	20
2.3.5 Découpage des gaines oxydées.....	22
2.4 Caractérisations microstructurales de la gaine oxydée.....	22
2.4.1 Observation au microscope optique de la section des gaines oxydées.....	22
2.4.2 Epaisseur des couches ex- $\beta$ , $\alpha$ (O) et $ZrO_2$ .....	25
2.4.3 Distribution des éléments dans les gaines oxydées .....	27
2.4.4 Teneur en oxygène des gaines oxydées.....	31
2.4.5 Nano-indentation .....	37
2.5 Conclusions .....	41
3 Essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) sur gaines oxydées .....	43
3.1 Essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) .....	43
3.2 Développement de l'essai EDC.....	44
3.2.1 Montage de l'essai EDC .....	44
3.2.2 Déroulement de l'essai EDC .....	46
3.3 Mesure de déformation par stéréo-corrélation d'images.....	47
3.3.1 Principe de la stéréo-corrélation d'images .....	47
3.3.2 Montage des caméras.....	50
3.3.3 Application du mouchetis .....	51

3.4	Post-traitement de l'essai EDC : Courbe force-déplacement.....	53
3.4.1	Courbe force-déplacement.....	53
3.4.2	Correction de la courbe force-déplacement.....	55
3.5	Post-traitement de l'essai EDC : déformation de la gaine.....	62
3.5.1	Calcul de la position.....	62
3.5.2	Transformation des coordonnées.....	63
3.5.3	Calcul de champs de déformations.....	66
3.5.4	Déformations circonférentielle de la gaine dans l'essai EDC.....	67
4	Comportement mécanique des gaines oxydées.....	71
4.1	Description de l'essai EDC sur les gaines oxydées.....	71
4.1.1	Eprouvettes.....	71
4.2	Courbes macroscopiques de l'essai EDC.....	72
4.2.1	Influence de l'ECR.....	72
4.2.2	Influence de la température d'oxydation.....	74
4.2.3	Influence du scénario de refroidissement.....	76
4.3	Ductilité des gaines oxydées.....	76
4.3.1	Evolution de la ductilité.....	76
4.3.2	Transition ductile-fragile.....	77
4.4	Essai EDC sur les gaines sablées.....	79
4.4.1	Sablage des gaines oxydées.....	79
4.4.2	Comportement de la couche ex- $\beta$ .....	80
4.4.3	Mécanisme de la fragilisation des gaines oxydées.....	82
4.5	Rupture des gaines oxydées dans l'essai EDC.....	83
4.5.1	Rupture des gaines oxydées.....	83
4.5.2	Observation des sections des gaines rompues par l'essai EDC.....	86
4.5.3	Fissuration de la couche $ZrO_2$ .....	92
4.6	Faciès de rupture des gaines oxydées.....	95
4.7	Conclusion.....	99
5	Modélisation et Simulation de l'essai EDC.....	101
5.1	Description de la modélisation de l'essai EDC.....	101
5.1.1	Modélisation géométrique.....	101
5.1.2	Modélisation des comportements du piston et du pion.....	102
5.1.3	Modélisation du contact avec frottement.....	102
5.2	Détermination des paramètres de modélisation.....	103
5.2.1	Simulation de l'essai EDC sur la gaine vierge.....	103
5.2.2	Sensibilité des paramètres de modélisation.....	104
5.2.3	Détermination de $v$ et $\mu_{pg}$ .....	107
5.3	Simulation de l'essai EDC sur gaine vierge.....	109
5.3.1	Modélisation élasto-plastique du comportement de la gaine.....	109
5.3.2	Montée élastique.....	110
5.3.3	Chargement plastique.....	112
5.4	Simulation de l'essai EDC sur gaines sablées.....	114
5.4.1	Modélisation géométrique de la couche ex- $\beta$ .....	114
5.4.2	Modélisation du comportement de la couche ex- $\beta$ .....	114
5.4.3	Rupture de la couche ex- $\beta$ .....	117
5.4.4	Evolution du comportement de la couche ex- $\beta$ .....	119
5.5	Simulation de l'essai EDC sur les gaines oxydées.....	120
5.5.1	Modélisation du comportement de la couche $\alpha(O)$ .....	120



---

5.5.2	Modélisation du comportement de la couche $\text{ZrO}_2$ .....	122
5.5.3	Evolution de la ductilité des gaines oxydées .....	128
5.6	Validation de la modélisation du comportement des gaines oxydées par la simulation de l'essai de compression d'anneau.....	130
5.6.1	Essai de compression d'anneau sur gaines oxydées .....	130
5.6.2	Modélisation de l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées ....	130
5.6.3	Résultats de la simulation .....	133
5.7	Conclusion .....	136
6	Conclusions et perspectives .....	139
6.1	Conclusions .....	139
6.2	Perspectives .....	140
A	Cartographie de teneur en oxygène .....	143
B	Résultats de la nanoindentation .....	145
C	Courbes de l'essai EDC sur gaines sablées .....	157
D	Photos des gaines oxydées rompues dans l'essai EDC .....	161
E	Essai de compression sur Téflon .....	163
	Références .....	167



# 1 Introduction

Le crayon combustible est l'un des éléments principaux des assemblages de combustible des réacteurs à eau pressurisée (REP). Dans le cadre des études visant à garantir l'intégrité de la gaine de crayon combustible, EDF est amené à caractériser l'évolution de la ductilité de la gaine lors de son séjour en réacteur ou après une situation accidentelle telle que l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). La thèse a pour but de caractériser le comportement à rupture des gaines ayant subi une situation d'APRP.

Dans ce chapitre le contexte de la recherche, qui concerne la fragilisation de la gaine due à l'oxydation à haute température et le besoin de caractériser la ductilité de la gaine après l'APRP, sera tout d'abord présenté (Section 1.1). Ensuite, l'état de l'art de l'étude de la fragilisation de la gaine par l'oxydation à haute température sera brièvement revu (Section 1.2.2). Enfin, la démarche suivie pendant la thèse sera exposée (Section 1.3).

## 1.1 Contexte

### 1.1.1 *Gaine de crayon de combustible*

Le parc nucléaire en France est constitué de réacteurs à eau pressurisée (REP). Le cœur du réacteur est constitué par des assemblages de combustible qui sont au nombre de 157 dans les tranches 900 MWe et de 191 dans les tranches 1300 MWe. Un assemblage de combustible (Figure 1-1) comporte, dans un réseau 17 x 17, 264 crayons, 24 tubes guides et un tube d'instrumentation central. Le crayon combustible (Figure 1-1) est constitué d'une gaine en alliage de zirconium dans laquelle sont empilées les pastilles d'oxyde d'uranium (UO<sub>2</sub>, MOX). Les alliages de zirconium retenus comme matériau de gainage sont choisis pour leur faible section d'absorption des neutrons (qui soutient la réaction en chaîne), leur bonne résistance à la corrosion, et leur bon comportement mécanique spécialement à haute température. Les dimensions des gaines sont : 9,50 mm de diamètre externe, 0,57 mm d'épaisseur et 3,85 m de longueur. Le réfrigérant primaire circule autour des gaines avec une pression de 155 bars et des températures de 285°C à l'entrée du réacteur et de 320°C en sortie.

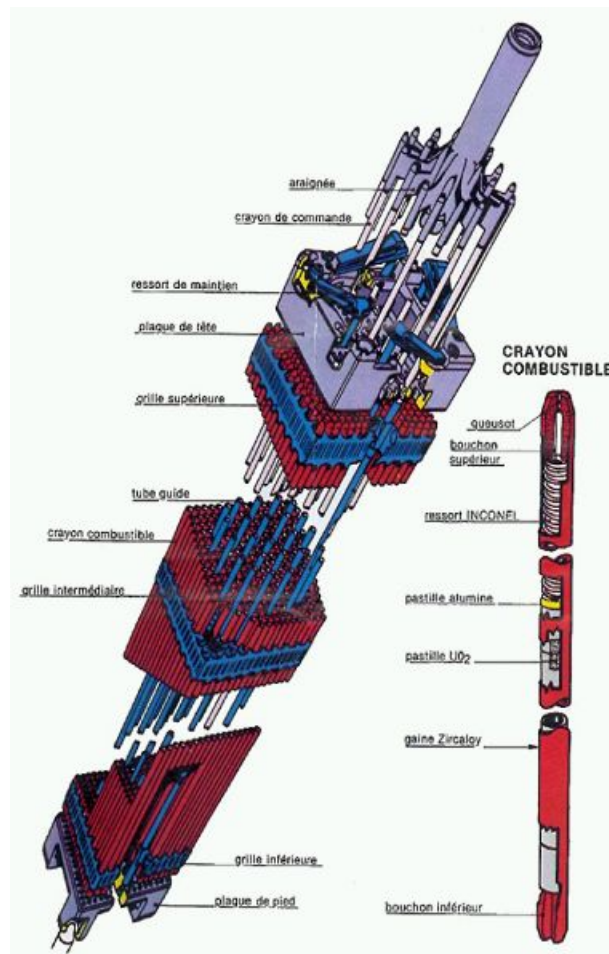


Figure 1-1 : Assemblage de combustible et crayon de combustible dans un REP.

### 1.1.2 Accident de perte de réfrigérant primaire (APRP)

Les gaines constituent la première barrière de confinement du combustible. La dégradation et la rupture des gaines en conditions de service et en conditions accidentelles hypothétiques doivent être prises en compte lors de l'établissement des critères de sûreté. Des accidents hypothétiques sont envisagés lors de la conception du réacteur. Pour un REP, les accidents hypothétiques les plus importants liés au combustible sont l'accident d'injection de réactivité (*Reactivity Initiated Accident* ou RIA en anglais) et l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire ou APRP (*Loss Of Coolant Accident* ou LOCA en anglais).

L'APRP correspond à une dépressurisation brutale du circuit primaire du réacteur due à la rupture d'une de ces branches. Cela conduit à une perte d'une grande partie du réfrigérant et le cœur n'est plus refroidi. La température dans le cœur du réacteur commence donc à monter. Pour éviter une augmentation excessive de température dans le cœur lors d'un APRP, qui pourrait conduire à la fusion du cœur, les injecteurs de sécurité sont conçus et équipés dans les réacteurs. Dès qu'un APRP est détecté, les injecteurs sont déclenchés, qui renoient le cœur. La durée caractéristique d'un transitoire d'APRP est de l'ordre de 1800s [PORT04].

La Figure 1-2 schématise le transitoire de température que les gaines subissent pendant un APRP. La température dans les gaines augmente à cause de la perte de réfrigérant, cette température peut atteindre plus de 1000°C (phase 1 sur la Figure 1-2). Ensuite le renoyage du cœur empêche la montée en température dans les gaines, et refroidit progressivement les gaines alors qu'elles s'oxydent en phase vapeur (phase 2 sur la Figure 1-2). Enfin, les gaines subissent une trempe au moment du passage du front liquide/vapeur (phase 3 sur la Figure 1-2).

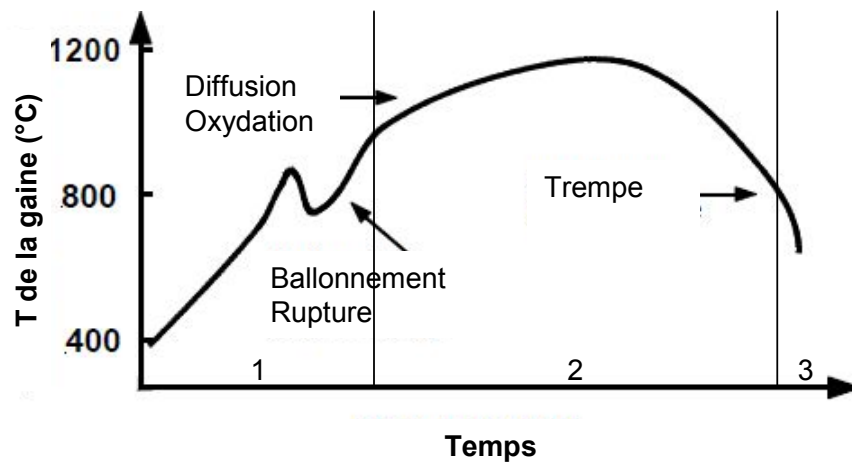


Figure 1-2 : Transitoire de température des gaines pendant un APRP ([BILL07]).

La gaine subit une série de transformations de phases pendant un transitoire de température d'APRP. Au début de l'APRP, la gaine en alliage de zirconium est en phase  $\alpha$  de zirconium<sup>1</sup> (Figure 1-3a). Lors de la montée en température (phase 1), la phase  $\alpha$  commence à se transformer en phase  $\beta$  à une température critique ( $T_{\alpha \rightarrow \alpha+\beta}$ ). La transformation de la phase  $\alpha$  vers la phase  $\beta$  se termine à la température  $T_{\alpha+\beta \rightarrow \beta}$ . A cet instant, toute la gaine est en phase  $\beta$  (Figure 1-3b).  $T_{\alpha \rightarrow \alpha+\beta}$  et  $T_{\alpha+\beta \rightarrow \beta}$  dépendent des éléments d'addition de l'alliage et des teneurs en oxygène et en hydrogène dans la gaine. Par exemple, pour le Zircaloy-4 avec 0,11% massique d'oxygène  $T_{\alpha \rightarrow \alpha+\beta} = 810^\circ\text{C}$  et  $T_{\alpha+\beta \rightarrow \beta} = 980^\circ\text{C}$  [BILL07]. La transformation  $\alpha \rightarrow \beta$  est souvent accompagnée du phénomène de ballonnement au cours de la montée en température. En effet, la perte de réfrigérant diminue la pression externe des gaines, et la gaine est le siège d'une déformation viscoplastique sous l'effet de la pression interne au cours de la montée en température. Ainsi la gaine se ballonne et peut se rompre (phase « ballonnement et rupture » schématisée sur la Figure 1-2).

Lors du commencement du renoyage, le cœur reste à haute température, et le réfrigérant injecté crée une couche de vapeur d'eau autour des gaines. Les gaines subissent une oxydation rapide à haute température sous vapeur d'eau (phase 2 sur la Figure 1-2). Une couche d'oxyde externe en  $\text{ZrO}_2$  se forme et l'oxygène diffuse dans la partie interne de la gaine en phase  $\beta$ . Une partie de la phase  $\beta$  où la teneur en oxygène dépasse la limite de solubilité se transforme en phase  $\alpha$ . Cette phase  $\alpha$  est nommée  $\alpha(\text{O})$  du fait qu'elle est stabilisée par l'oxygène et donc riche en oxygène (Figure 1-3c).

<sup>1</sup> La gaine contient en plus une couche d'oxyde externe formée par corrosion dans le circuit primaire au cours du fonctionnement normal du réacteur.

Lors de la trempe (phase 3 sur la Figure 1-2),  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  ne présentent pas de transformation de phase tandis que la phase  $\beta$  se retransforme en phase  $\alpha$  et sera nommée ex- $\beta$  pour la distinguer de la phase  $\alpha(O)$ . A l'issue de la trempe, la gaine comporte trois couches qui, de l'extérieur vers l'intérieur, sont : la couche  $ZrO_2$ , la couche  $\alpha(O)$  et la couche ex- $\beta$  (Figure 1-3d).

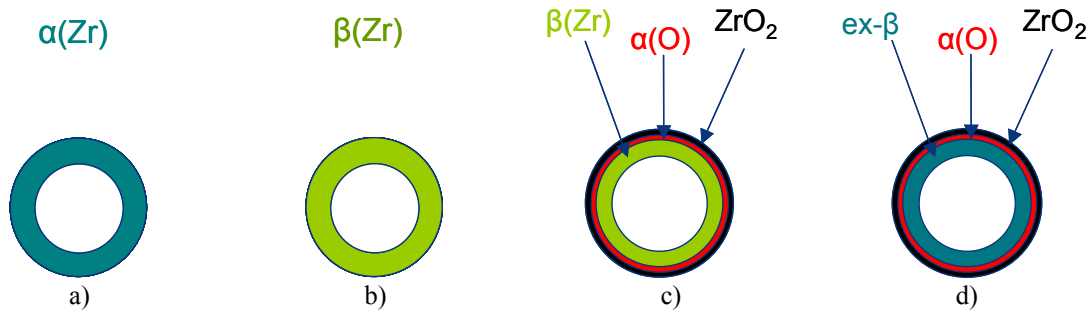


Figure 1-3 : Transformation de phases dans les gaines pendant un transitoire d'APRP.

## 1.2 Caractérisation de la ductilité de la gaine oxydée à haute température

### 1.2.1 Critères de sûreté liés à l'APRP établis en 1973

Les couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  sont fragiles, et la couche ex- $\beta$  est fragilisée par la prise d'oxygène pendant l'oxydation à haute température. La gaine est donc fragilisée par un transitoire d'APRP. Une fragilisation excessive par l'APRP peut entraîner la rupture de la gaine par le choc thermique lors de la trempe ou par des manipulations ou des sollicitations externes (par exemple le séisme) dans la phase post-trempe d'un APRP. Pour éviter la rupture potentielle de la gaine et assurer l'intégrité du combustible et la refroidissabilité du cœur après un APRP, il est donc nécessaire d'établir des critères de sûreté liés à l'APRP.

La plupart des critères utilisés actuellement se basent sur les critères établis par l'USNRC (*United States Nuclear Regulatory Commission*) en 1973. L'USNRC considère que la préservation de la ductilité de la gaine après l'APRP est la meilleure garantie contre la rupture potentielle de la gaine et assure donc l'intégrité du combustible et la refroidissabilité du cœur. L'USNRC propose des critères basés sur les résultats de la caractérisation de la ductilité des gaines oxydées à haute température effectuée par Hobson et al [HOB72, HOB73]. Hobson et al effectuent une oxydation isotherme à haute température sous vapeur d'eau suivie par une trempe à l'eau sur des gaines en Zircaloy-4 pour simuler un APRP. Ils effectuent ensuite des essais de compression d'anneau pour caractériser la ductilité des gaines oxydées. Ayant défini la ductilité nulle, ils trouvent le seuil de ductilité en fonction de la proportion de phases fragiles (c'est-à-dire de l'ensemble des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$ ). En corrélant la proportion de phases fragiles avec la cinétique d'oxydation, des critères de sûreté sont établis. Les critères de l'USNRC sont exprimés par un ECR (*Equivalent Cladding Reacted* en anglais, qui décrit le niveau d'oxydation) inférieur à 17% (calculé à partir de la cinétique Baker et Just [BAKE62]), et une température d'oxydation inférieure à 1204°C.

### 1.2.2 Etudes récentes

Après l'établissement de critères de sûreté liés à l'APRP par l'USNRC, l'étude de la ductilité de la gaine après l'APRP et la corrélation de cette ductilité avec l'oxydation de la gaine à haute température sont restées un champ de recherche dynamique.

La cinétique de l'oxydation en vapeur à haute température des gaines en Zircaloy-4 a été étudiée [LEIS78, PAWE79, BIED78, KAWA78, URBA78, SAGA84]. Dans les trente dernières années de nouveaux matériaux pour la gaine de crayon de combustible se sont développés. Mardon et al [MARD03] et Portier et al [PORT04] ont étudié la cinétique d'oxydation en vapeur à haute température du matériau M5<sup>®</sup>. Leech [LEEC01] a étudié la cinétique d'oxydation à haute température du matériau ZIRLO<sup>®</sup>. L'ensemble de ces études montrent que la cinétique Baker et Just surestime l'oxydation. Les critères basés sur la cinétique de Baker et Just sont donc considérés conservatifs. L'oxydation du Zircaloy-4 en vapeur à haute température a par ailleurs été simulée numériquement avec un modèle de diffusion de l'oxygène [MA08, CORV10, PAWE74].

Lors de l'établissement des critères de sûreté liés à l'APRP par l'USNRC, les effets de l'irradiation et de la corrosion en service des gaines n'ont pas été pris en compte.

L'effet d'irradiation sur la ductilité après l'APRP peut être négligé. En effet, les défauts créés par l'irradiation sont rapidement restaurés par le recuit pendant la montée de la température lors d'un APRP [PORT04].

La corrosion en service conduit à la formation d'une couche d'oxyde à l'extérieur de la gaine et diminue donc l'épaisseur de la gaine ductile. De plus, l'hydrogène dégagé pendant la corrosion diffuse dans l'épaisseur de la gaine et peut précipiter sous forme d'hydrures fragiles. La Figure 1-4 montre une gaine après 6 cycles de service en réacteur qui présente une couche d'oxyde externe et des hydrures. La corrosion est d'autant plus importante que le taux de combustion est élevé. Une gaine en Zircaloy-4 détendu dans un réacteur qui fonctionne avec un taux de combustion de 60 GWj/tM peut avoir une couche d'oxyde d'épaisseur de 100 µm formée en conditions de service [BERN05]. Sa teneur en hydrogène peut alors être de l'ordre de 600 ppm [BRAC08].

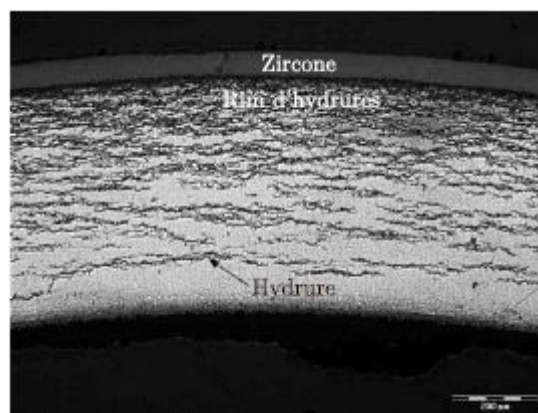


Figure 1-4 : Gaine en Zircaloy-4, après 6 cycles en REP, présentant une couche d'oxyde externe, des hydrures et un rim d'hydrures ([BOSS04]).

Pour prendre en compte les effets de corrosion, des gaines pré-oxydées et pré-hydrurées ont été oxydées à haute température et leur ductilité a été caractérisée. Les résultats de l'étude sur la gaine pré-oxydée menée par Brachet et al [BRAC08] montrent que la pré-oxydation influence peu la ductilité. L'influence d'une pré-hydruration sur la ductilité des gaines après l'APRP a été caractérisée par Brachet et al [BRAC08] et Billone et al [BILL07]. La pré-hydruration diminue la ductilité après l'APRP. L'effet de fragilisation due à l'hydruration peut porter sur deux aspects. Le premier aspect est la fragilisation par la présence des hydrures fragiles dans la gaine [HUAN94, PRAT94, GRAN98, ARSE97, ARSE03]. Le deuxième est dû au fait que la présence d'hydrogène dans la gaine augmente la limite de solubilité de l'oxygène dans la phase  $\beta$  à haute température. La phase  $\alpha$  des gaines pré-hydrurée possède ainsi une teneur en oxygène plus élevée ce qui la fragilise. D'après Brachet et al l'hydruration fragilise la gaine oxydée à haute température par ces deux effets qui agissent simultanément [BRAC08].

### **1.2.3 Méthodes de caractérisation**

Etant donné que le matériau à caractériser est sous forme tubulaire, les essais mécaniques qui ont été employés dans les caractérisations de la ductilité des gaines après l'APRP citées précédemment sont basées sur l'essai de compression d'anneau, l'essai de flexion sur tube et l'essai d'impact de type Charpy. Tous ces essais sont des essais de structure, il est donc nécessaire de définir une démarche pour juger la ductilité de l'éprouvette à partir de ces essais. Pour l'essai de compression d'anneau (Figure 1-5), qui est l'essai de référence pour caractériser la ductilité des gaines oxydées à haute température, Hobson et al mesurent la variation de la forme des gaines rompues par rapport à l'état avant essai, et en déduisent la déformation plastique [HOBS72, HOBS73]. Les gaines qui ne montrent pas de déformation plastique sont considérées comme ayant une « ductilité nulle ».

La définition de la ductilité de Hobson a une nature subjective. Dans les études plus récentes, la courbe macroscopique force-déplacement de l'essai est utilisée. La courbe macroscopique d'un essai de compression d'anneau présente plusieurs chutes de force plus ou moins brutales (Figure 1-6). Souvent la première chute de force significative est retenue pour le dépouillement, et les caractéristiques telles que la force maximale, le déplacement plastique, le déplacement à rupture et l'énergie à rupture sont calculés (Figure 1-7). Billone et al [BILL07] utilisent le déplacement plastique et définissent un seuil pour juger si une gaine est ductile ou fragile. Hozer et al [HOZE08] jugent la ductilité de la gaine oxydée à partir d'un seuil sur l'énergie à rupture. Ces démarches de dépouillement sont phénoménologiques et les résultats peuvent aussi dépendre du dispositif d'essai et des dimensions de l'éprouvette.



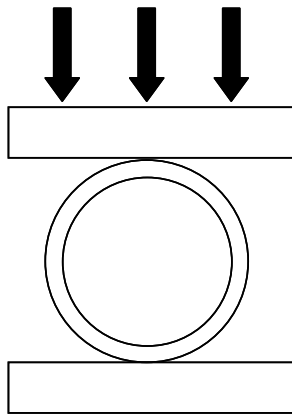


Figure 1-5 : Schéma de l'essai de compression d'anneau.

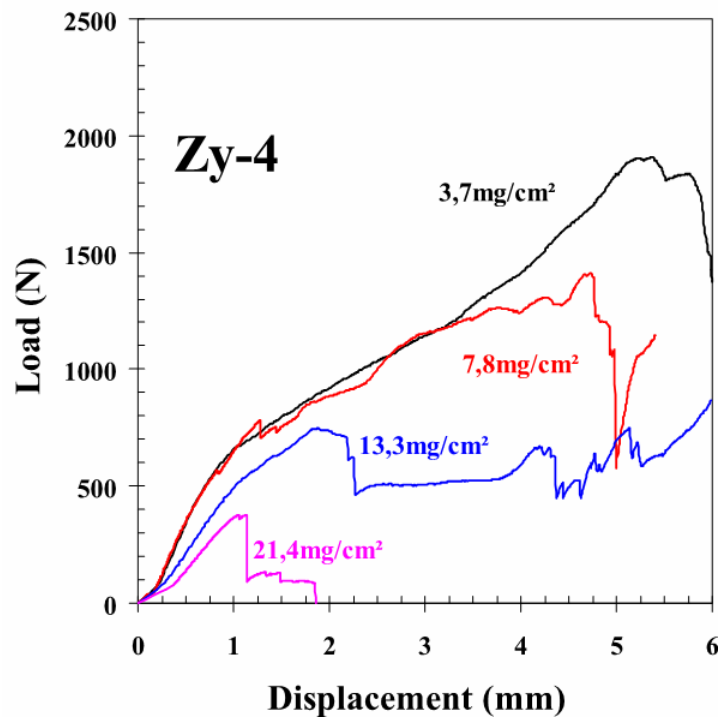


Figure 1-6 : Courbes macroscopique force - déplacement de l'essai de compression d'anneau sur les gaines en Zircaloy-4 oxydées à haute température [BRAC01].

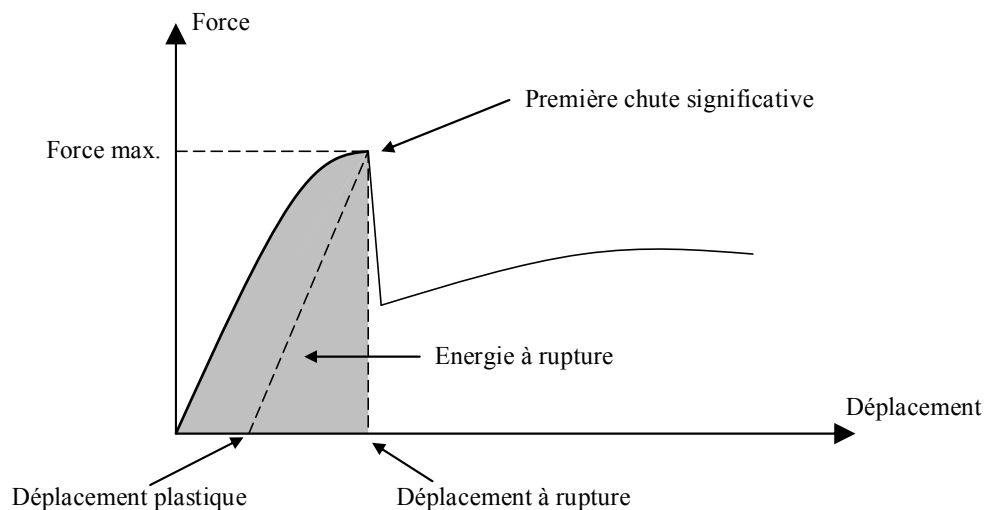


Figure 1-7 : Dépouillement de la courbe macroscopique issue de l'essai de compression d'anneau sur les gaines oxydées à haute température.

### 1.2.4 Problématique

La ductilité post-trempe des gaines oxydées à haute température est représentée par des indicateurs macroscopiques qui sont liés aux essais mécaniques employés et aux définitions de la ductilité. Une comparaison directe entre les ductilités mesurées par différentes études n'est pas possible. Il est souhaitable d'avoir des connaissances plus

approfondies sur le comportement mécanique de ces gaines oxydées multicouches (trois phases).

Une démarche qui vise à caractériser séparément les comportements mécaniques des trois phases constituant d'une gaine oxydée à haute température a été mise en œuvre par Stern [STER07]. Il a préparé des plaques en phase  $\alpha(O)$  homogène et en ex- $\beta$  homogène en variant la teneur en oxygène puis a caractérisé le comportement mécanique de ces plaques. Des corrélations entre le comportement mécanique et la teneur en oxygène sont obtenues. Les lois de comportement ainsi identifiées pourront être injectées dans un calcul par éléments finis d'un essai de compression d'anneau pour faciliter son interprétation. Il faut toutefois noter que les phases homogènes ainsi préparées par Stern peuvent être peu représentatives des phases en présence dans une gaine oxydée.

### 1.3 Objectif et démarche de la thèse

La thèse a pour but de caractériser le comportement mécanique des gaines oxydées à haute température en fournissant une interprétation plus physique des phénomènes mis en jeu.

Comme nous l'avons vu, les essais mécaniques qui ont pour l'instant été employés pour tester le comportement mécanique de ce type de matériau sont les essais de compression d'anneau, les essais de flexion et les essais d'impact. Or ces essais développent un champ de contraintes complexe dans un tel matériau à trois phases. Pour l'essai de compression d'anneau, cette complexité en contraintes se traduit par de nombreuses chutes de force sur la courbe macroscopique (Figure 1-6). L'interprétation plus approfondie de l'essai est difficile.

On souhaite donc disposer d'un essai mécanique relativement facile à interpréter. L'essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) développé à Studsvik [GRIG01] fournit un nouveau moyen pour tester un matériau tubulaire. L'essai EDC crée un chargement proche d'une traction circonférentielle dans le matériau tubulaire. L'emploi de l'essai EDC dans la caractérisation du comportement mécanique des gaines oxydées à haute température peut permettre une interprétation plus facile des résultats par rapport aux essais classiquement utilisés. C'est pourquoi cet essai est utilisé dans ce travail.

Dans le cadre de la thèse, des gaines en Zircaloy-4 sont oxydées à haute température dans le dispositif DEZIROX du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA). L'oxydation est effectuée à 1100°C et 1200°C avec différents niveaux d'oxydation contrôlés par les durées d'oxydation. L'oxydation à haute température est suivie par un refroidissement. Deux scénarios de refroidissement sont effectués : la trempe à l'eau et le refroidissement à l'air. Les études métallographiques des gaines oxydées à haute température sont ensuite réalisées.

Les essais EDC sont développés à EDF avec une instrumentation adaptée. Ensuite, les gaines oxydées à haute température sont testées par l'essai EDC. Pour tester la phase ex- $\beta$  seule, des gaines oxydées sont sablées afin d'enlever la zircone et la phase  $\alpha(O)$  puis sont testées par des essais EDC. Enfin pour comprendre et caractériser le comportement des gaines oxydées, les faciès de rupture post-essai sont observés et l'essai EDC est modélisé et simulé avec la méthode des éléments finis. A partir des résultats de l'essai EDC et la simulation, un critère de rupture des gaines oxydées est établi.

## 1.4 Plan de la thèse

La thèse est constituée de six chapitres.

Après ce premier chapitre introductif, le chapitre 2 présente l'essai d'oxydation à haute température sur des gaines en Zircaloy-4 détendu. Trois paramètres sont pris en compte dans l'essai d'oxydation : le niveau d'oxydation, la température d'oxydation et le scénario de refroidissement. Les gaines oxydées font ensuite l'objet des caractérisations microstructurales telles que l'observation au microscope optique, l'analyse à la microsonde et la nano-indentation.

Le chapitre 3 concerne le développement de l'essai EDC au sein d'EDF R&D. Le montage d'essai et la mesure des déformations de la gaine au cours de l'essai EDC par stéréo-corrélation d'images et les post-traitements de l'essai EDC sont présentés.

Le chapitre 4 présente le comportement mécanique des gaines oxydées caractérisé à partir des courbes de l'essai EDC. Les influences du niveau d'oxydation, de la température d'oxydation et du scénario de refroidissement sont étudiées. Le comportement de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées est caractérisé à partir de l'essai EDC sur les gaines sablées. Le chapitre 4 est complété avec une étude fractographique.

Dans le chapitre 5, l'essai EDC sur les gaines oxydées est modélisé et simulé par la méthode des éléments finis. Le comportement des couches ex- $\beta$ ,  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  est modélisé. Un critère de rupture sur la déformation équivalente de la couche ex- $\beta$  est établi. La modélisation du comportement et le critère de rupture sont validés par la simulation des essais de compression d'anneau sur gaines oxydées.

Le chapitre 6 présente les conclusions générales de la thèse et les perspectives.



## 2 Oxydation à haute température des gaines en Zircaloy-4

Pour simuler un transitoire d'APRP, les gaines en Zy4 sont oxydées à haute température. Une vue globale sur les alliages de zirconium (section 2.1) et sur l'oxydation des gaines en Zy4 (section 2.2) est présentée. Ensuite, le matériau étudié et l'essai d'oxydation effectué dans le cadre de cette thèse sont décrits (section 2.3). Enfin, des observations et caractérisations microstructurales sur les gaines oxydées sont exposées (section 2.4).

### 2.1 Alliages de zirconium

Les gaines de crayon combustible des REP sont en alliage de zirconium. Dans cette section, une vue globale sur les alliages de zirconium sera fournie.

Le zirconium est l'élément chimique de numéro atomique 40. Sa masse atomique est de 91,2 et sa masse volumique de  $6,52 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  à  $20^\circ\text{C}$ . A l'état pur, le zirconium a deux phases solides allotropiques :

- la phase  $\alpha$ , stable à température  $T < 863^\circ\text{C}$ , qui présente une structure cristalline hexagonale compacte avec  $a = 0,323 \text{ nm}$  et  $c/a = 1,594$  à température ambiante ;
- la phase  $\beta$ , stable à température  $T > 863^\circ\text{C}$  jusqu'à la température de fusion ( $1855^\circ\text{C}$ ), avec une structure cristalline cubique centrée ( $a = 0,361 \text{ nm}$ ) à température ambiante [LESA08].

Pour ses propriétés physico-chimiques et mécaniques (résistance à la corrosion, résistance à l'irradiation, faible section d'absorption des neutrons, ductilité, conservation des propriétés à haute température) le zirconium est utilisé dans l'industrie nucléaire pour fabriquer les gaines des crayons de combustible dans les réacteurs à eau pressurisée (REP). Pour cette application, le zirconium n'est pas utilisé à l'état pur mais sous forme d'alliages. Il existe différents alliages de zirconium pour la gaine de crayon combustible des REP, parmi lesquels le Zircaloy-4 (ou Zy-4 en abréviation) est le matériau le plus largement utilisé actuellement et le matériau de référence pour le développement des nouveaux alliages (par exemple le M5<sup>®</sup> d'AREVA-NP et le Zirlo<sup>®</sup> de Westinghouse). Les principaux éléments additifs du Zircaloy-4 et leurs effets sont :

- L'étain : il améliore la limite d'élasticité du zirconium et la résistance au fluage mais diminue la résistance à la corrosion ;
- Le fer et le chrome : ils améliorent la résistance à la corrosion. Ils limitent la croissance des grains lors des traitements de recristallisation, et par conséquent améliorent la tenue mécanique ;
- L'oxygène : il améliore les propriétés mécaniques (par exemple la limite d'élasticité).

Pour fabriquer les gaines en Zy-4, une mise en forme qui consiste en un forgeage à chaud, une extrusion à chaud puis un laminage à pas de pèlerin est effectuée à partir des lingots d'alliage. La fabrication des gaines finit par des traitements thermiques. Le Zy-4 dit « détendu » subit un traitement de détensionnement qui consiste à porter le matériau à 450-500°C pendant quelques heures afin de relaxer l'essentiel des contraintes internes. Le Zy-4 dit « recristallisé » subit un traitement thermique à une température supérieure à 550°C, qui permet la recristallisation du matériau.

Les deux types de Zy-4 ont des microstructures très différentes. Le Zy-4 détendu a des grains très allongés dans la direction de laminage alors que le Zy-4 recristallisé a des grains plutôt équiaxiaux (Figure 2-1) [BUSS09A]. Le Zy-4 détendu a une texture cristallographique marquée : les axes  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale sont préférentiellement inclinés à  $\pm 30-40^\circ$  de la direction radiale dans le plan radial-circonférentiel et les directions  $\langle 10\bar{1}0 \rangle$  sont majoritairement orientées selon la direction axiale (Figure 2-2). La structure cristalline hexagonale compacte et la texture entraîne un comportement plastique anisotrope. De plus, le Zy-4 détendu a une densité de dislocation élevée, qui entraîne une résistance mécanique élevée par rapport au Zy-4 recristallisé [SCHA97] (Tableau 2-1).

Tableau 2-1 : Propriétés mécaniques du Zy-4 à température ambiante, sens longitudinal [SCHA97].

	Zy-4 détendu	Zy-4 recristallisé
Limite d'élasticité (MPa)	674	414
Charge à rupture (MPa)	859	574

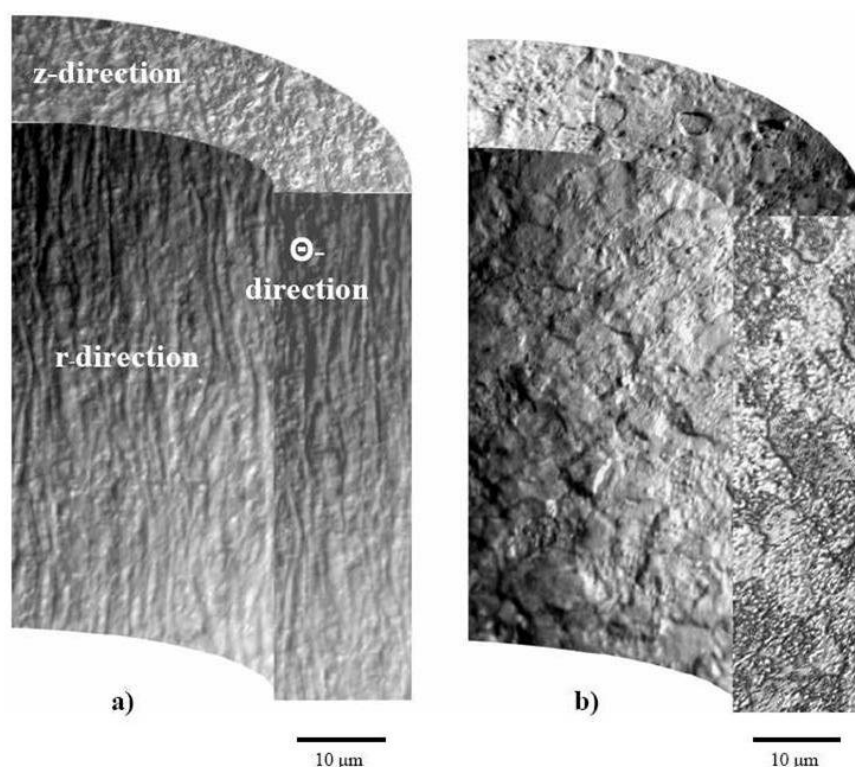


Figure 2-1 : Grains des gaines en Zy-4, a) détendu, b) recristallisé [BUSS09A].

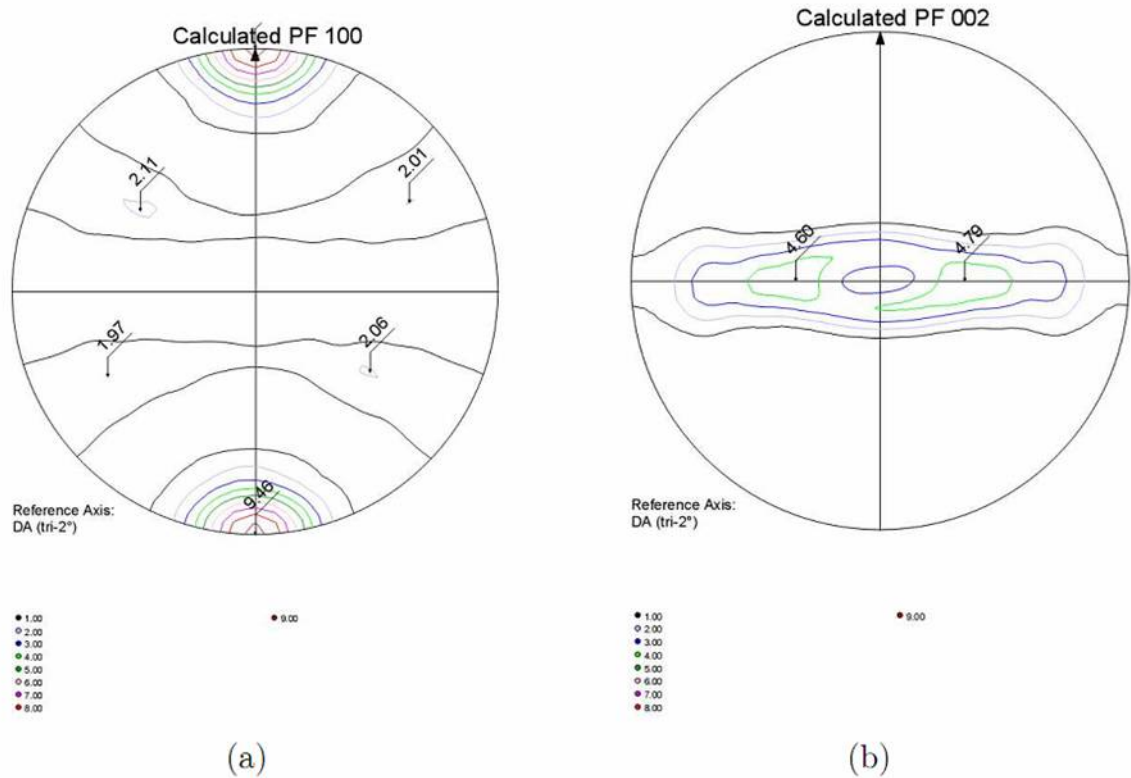


Figure 2-2 : Texture des gaines en Zircaloy-4 détendu : figures de pôle (a) plans prismatiques  $\{10\bar{1}0\}$ , (b) plans de base  $\{0002\}$  (direction horizontale : direction circonférentielle du tube, direction verticale : direction axiale) [RACI05].

## 2.2 Oxydation à haute température des gaines en Zy-4

### 2.2.1 Processus d'oxydation

D'après le diagramme de phase Zr-O (Figure 2-3), à haute température (supérieure à  $1000^{\circ}\text{C}$ ) la gaine est en phase  $\beta$ . Lorsque la gaine est exposée dans un milieu de vapeur, une couche d'oxyde de zirconium ( $\text{ZrO}_2$ ) est formée sur la surface qui est en contact avec la vapeur par la réaction :



La croissance de la couche  $\text{ZrO}_2$  se fait par la diffusion de l'oxygène à travers la couche  $\text{ZrO}_2$  et par la formation de  $\text{ZrO}_2$  devant la frontière oxyde/métal. De plus l'oxygène diffuse dans la couche en phase  $\beta$  sous-jacente de la couche  $\text{ZrO}_2$ . La diffusion de l'oxygène dans la couche en phase  $\beta$  crée un gradient de teneur en oxygène décroissant vers l'intérieur de la gaine. La limite de solubilité de l'oxygène dans la phase  $\beta$  est atteinte tout d'abord dans la partie sous-jacente de la couche  $\text{ZrO}_2$ , et la phase  $\beta$  s'y transforme en phase  $\alpha$ , qui a une limite de solubilité plus élevée (Figure 2-3). Cela crée une couche intermédiaire  $\alpha(\text{O})$  entre la couche  $\text{ZrO}_2$  et la couche en phase  $\beta$  non transformée dans la

gaine. Au fur et à mesure de l'oxydation, les épaisseurs des couches  $\text{ZrO}_2$  et  $\alpha(\text{O})$  s'accroissent, et celle de la couche en phase  $\beta$  diminue en s'enrichissant en oxygène.

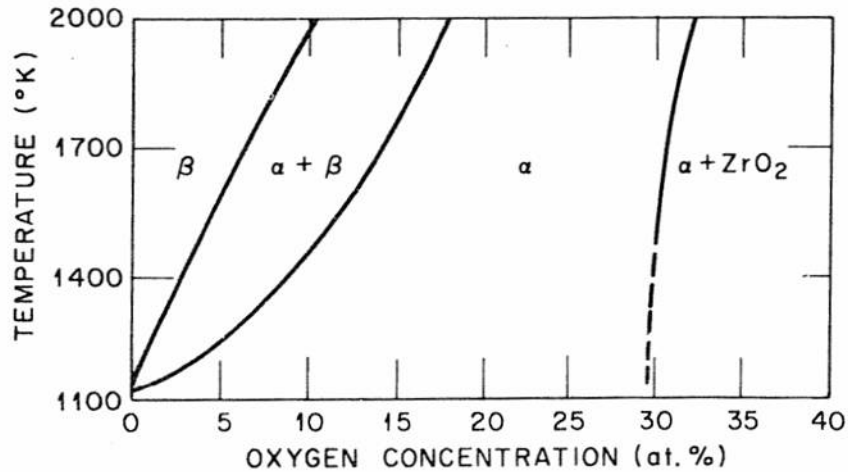


Figure 2-3 : Diagramme de phase Zr – O [PAWE74].

### 2.2.2 Cinétique d'oxydation

La prise d'oxygène pendant une oxydation entraîne un gain de masse. Dès les années 1950 des études sur la cinétique d'oxydation en vapeur à haute température ( $T > 1000^\circ\text{C}$ ) des gaines en Zy-4 détendu [BAKE62, PAWE79, LEIS78, URBA78, KAWA78] montrent que le gain de masse  $\Delta w$  dû à l'oxydation obéit à une loi parabolique par rapport à la durée d'oxydation pour une oxydation isotherme. La loi parabolique s'écrit :

$$\Delta w^2 = \delta^2 \cdot t \quad (2-2)$$

La constante de loi parabolique  $\delta^2$  dépend de la température d'après une loi d'Arrhenius pour une température supérieure à  $1000^\circ\text{C}$  (Figure 2-4) :

$$\delta^2 = A \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2-3)$$

où  $T$  est la température d'oxydation en K,  $R$  est la constante des gaz parfaits qui vaut  $8,314 \text{ J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ,  $Q$  est l'énergie d'activation en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$ , et  $A$  est une constante. Les différentes lois d'oxydation se distinguent par les valeurs  $A$  et  $Q$  présentées dans le Tableau 2-2.



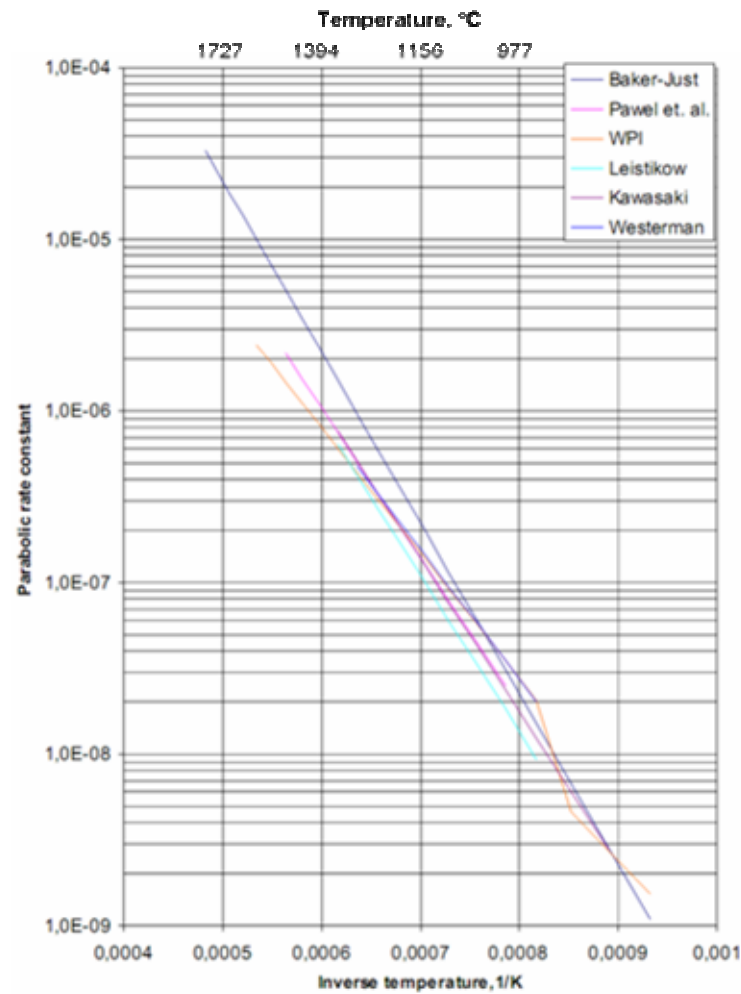


Figure 2-4 : Constante  $\delta^2$  de la loi parabolique (en unité  $\text{g}^2\cdot\text{cm}^4\cdot\text{s}^{-1}$ ) en fonction de l'inverse de la température d'oxydation [NEA09]

Tableau 2-2 : Paramètres des cinétiques d'oxydation des gaines en Zy-4 à haute température.

	$A$ ( $\text{g}^2\cdot\text{cm}^4\cdot\text{s}^{-1}$ )	$Q$ ( $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$ )
Baker et al [BAKE62]	4,098	190465
Leistikow et al [LEIS78]	0,524	174360
Pawel et al [PAWE79]	0,3622	167190
Kawasaki et al [KAWA78]	0,468	170410
Urbanic et al [URBA78]	0,0364	139900

Les études sur l'oxydation à haute température des gaines en Zy-4 détendu [PAWE79, LEIS78, KAWA78, URBA78] montrent que la cinétique de la croissance des épaisseurs des couches  $\text{ZrO}_2$  et  $\alpha(\text{O})$  obéit également à une loi parabolique :

$$e^2 = \delta^2 \cdot t \quad (2-4)$$

L'évolution de la constante de la loi parabolique  $\delta^2$  avec la température peut être décrite par une loi d'Arrhenius (2-3). Les paramètres A et Q pour décrire la cinétique de la croissance des couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  sont présentés dans le Tableau 2-3.

**Tableau 2-3 : Paramètres des cinétiques de la croissance des couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  pendant l'oxydation des gaines en Zy-4 à haute température.**

	$A_{\alpha(\text{O})} (\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	$Q_{\alpha(\text{O})} (\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$	$A_{\text{ZrO}_2} (\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	$Q_{\text{ZrO}_2} (\text{J} \cdot \text{mol}^{-1})$
Leistikow et al [LEIS78]	0,508	182347	$7,82 \times 10^{-2}$	168127
Pawel et al [PAWE79]	1,523	201515	$2,25 \times 10^{-2}$	150236
Kawasaki et al [KAWA78]	-	-	$2,14 \times 10^{-2}$	150110
Urbanic et al [URBA78]	0,153	164937	$1,30 \times 10^{-3}$	112900

### 2.2.3 Equivalent Cladding Reacted (ECR)

Le niveau d'oxydation en vapeur à haute température des gaines en alliage de zirconium peut être caractérisé par l'ECR (*Equivalent Cladding Reacted* en anglais). Par définition, l'ECR est le rapport de l'épaisseur de métal oxydé à l'épaisseur initiale de la gaine en supposant que tout l'oxygène absorbé sert à la formation de la zircone  $\text{ZrO}_2$ . L'ECR peut se calculer par le gain de masse lié à l'introduction de l'oxygène pendant l'oxydation. Pour l'oxydation simple-face l'ECR est calculé selon :

$$\text{ECR} = \frac{43,9 \cdot \Delta w}{e \cdot (1 - e / D_0)} \quad (2-5)$$

pour l'oxydation double-faces l'ECR est calculé selon :

$$\text{ECR} = 87,8 \cdot \Delta w / e \quad (2-6)$$

où l'ECR est en %,  $\Delta w$  est le gain de masse en  $\text{g/cm}^2$ ,  $e$  est l'épaisseur du tube en cm,  $D_0$  est le diamètre extérieur du tube en cm [BILL07].

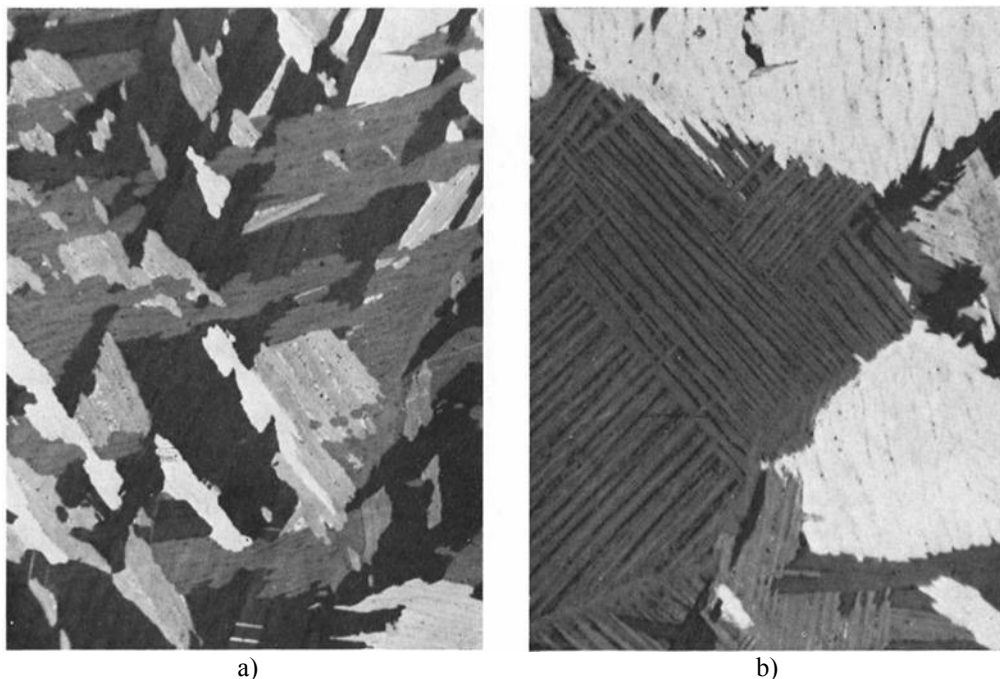
### 2.2.4 Microstructure de la phase ex- $\beta$ : effet de la vitesse de refroidissement

Lors du refroidissement d'une gaine oxydée à haute température, la phase  $\beta$  subit une transformation de phase  $\beta \rightarrow \alpha$  et devient la phase ex- $\beta$ . La vitesse de refroidissement joue un rôle important sur la transformation  $\beta \rightarrow \alpha$  et la microstructure de la phase ex- $\beta$  dépend de la vitesse de refroidissement [HOLT70, WOO79, HONG99].

A une faible vitesse de refroidissement comme le refroidissement à l'air, l'ex- $\beta$  peut montrer une structure à lamelles (structure de Widmanstätten). Dans ce cas, des variants  $\alpha$  précipitent dans des plans cristallographiques de  $\beta$  suivant la relation suivante [HOLT70] :

$$\{0001\}_{\alpha} // \{110\}_{\beta}, \langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha} // \langle 111 \rangle_{\beta}$$

On peut avoir deux structures à lamelles différentes : « panier tressé » et « lamelles parallèles » (Figure 2-5). La microstructure dite « panier tressé » résulte de la précipitation aléatoire des lamelles  $\alpha$  sur plusieurs plans dans un grain  $\beta$ , alors que la microstructure dite « lamelles parallèles » résulte de la précipitation des lamelles  $\alpha$  sur un même plan [HOLT70]. La formation de la structure « panier tressé » est liée à la présence des particules de phases secondaires qui sont insolubles dans  $\beta$  [OKVI70, HOLT70]. Ces particules dispersées aléatoirement dans  $\beta$  servent de siège à la nucléation des lamelles  $\alpha$ , et la structure « panier tressé » est formée. En l'absence de particules de phase secondaire, la nucléation des lamelles  $\alpha$  a lieu au bord du grain  $\beta$ , et la structure « lamelles parallèles » est formée [HOLT70]. L'ex- $\beta$  des gaines oxydées et refroidies dans la thèse présente donc une structure « lamelles parallèles ».



**Figure 2-5 : Deux structures de Widmanstätten, a) panier tressé et b) lamelles parallèles (grossissement x250), obtenues par refroidissement à l'air à partir de 1100°C [HOLT70].**

D'après [HOLT70], lorsque la vitesse de refroidissement est de l'ordre de 2000°C/s, la phase ex- $\beta$  montre une structure de type martensitique. [HONG99] a obtenu une phase ex- $\beta$  qui présente une structure à fines lamelles (Figure 2-6) pour une vitesse de refroidissement de 1000°C/s.

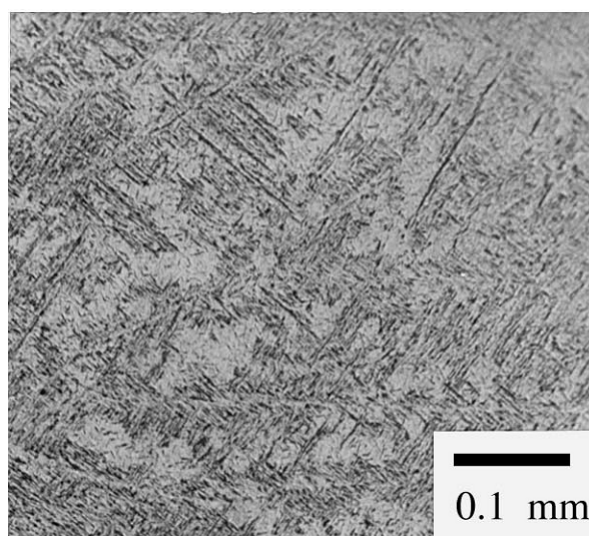


Figure 2-6 : Structure à fines lamelles de l'ex- $\beta$  de 0,5% mass. d'oxygène, trempé à l'eau à partir de 1300°C, la vitesse de refroidissement mesurée de 1000°C/s [HONG99].

## 2.3 Essais d'oxydation à haute température des gaines en Zy-4 détendu

### 2.3.1 Matériau de l'étude

Le matériau étudié a été approvisionné auprès d'AREVA-NP, il s'agit d'une gaine en Zy-4 détendu (ASTM B350-02 Grade R60804). La spécification du Zy-4 et la composition chimique du lingot sont données dans le Tableau 2-4. Le diamètre externe et l'épaisseur de la gaine sont 9,50 mm et 0,57 mm respectivement. Ce matériau a le repère U801 au magasin MMC<sup>2</sup>.

Tableau 2-4 : Composition chimique en pourcentage massique pour le Zy-4 détendu (coulée n°250172 Zr4).

Élément	Spécification (% mass.)	Composition du lingot (% mass.)
C	0,01-0,018	0,014
Cr	0,07-0,13	0,12
Fe	0,18-0,24	0,22
Fe+Cr	0,28-0,37	0,34
O	0,10-0,15	0,12
Si	0,0070-0,0120	0,0100
S	0,0010-0,0035	0,0013
Sn	1,20-1,50	1,3
Zr	balance	balance

<sup>2</sup> Département Matériaux et Mécanique des Composants d'EDF R&D

### 2.3.2 Programme d'essai

La ductilité des gaines oxydées est influencée par des paramètres d'oxydation. Le niveau d'oxydation des gaines (décrit en ECR), et la température d'oxydation sont les paramètres clés considérés dans la plupart des études concernant la ductilité des gaines oxydées. Ces deux paramètres sont pris en compte dans la thèse. En plus, les études menées par [BRAC08, BILL07] montrent une influence du scénario de refroidissement sur la ductilité résiduelle.

Dans la thèse, une oxydation isotherme à haute température en vapeur sur les gaines en Zy-4 a été effectuée. Les différents paramètres qui influencent la ductilité des gaines oxydées pris en compte dans l'essai d'oxydation sont :

- le niveau d'oxydation (décrit en ECR) ;
- la température d'oxydation ;
- le scénario de refroidissement.

Dans notre travail, les gaines sont oxydées à 1100°C et 1200°C. Les niveaux d'oxydation envisagés varient de 3% à 25% d'ECR. D'après les autres études [BRAC08, BILL07], ces paramètres permettent d'obtenir des gaines oxydées qui montreront différentes ductilités avec une transition d'un mode fragile vers un mode ductile. Deux scénarios de refroidissement : trempe à l'eau et refroidissement à l'air, sont étudiés. Le Tableau 2-5 présente le programme d'oxydation.

**Tableau 2-5 : Programme des essais d'oxydation.**

ECR visé (%) \ Température (°C)	3	6	10	17	25
1100		- trempe -à l'air	- trempe -à l'air	- trempe -à l'air	- trempe -à l'air
1200	- trempe	- trempe -à l'air	- trempe -à l'air	- trempe -à l'air	

### 2.3.3 Réalisation de l'essai d'oxydation

L'essai d'oxydation simple-face isotherme à 1100°C et à 1200°C est effectué sur les gaines en Zy-4 détendu dans le dispositif DEZIROX au Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) (Figure 2-7). Les échantillons de gaine de 150 mm de long sont bouchonnés aux deux extrémités et fixés au bout d'un tube en alumine. Un four à résistance est chauffé jusqu'à la température désirée, et un flux de vapeur d'eau est généré par une chaudière et injecté dans le four en continu à pression atmosphérique. La gaine est ensuite introduite dans le four et oxydée en vapeur pendant une certaine durée. L'ECR est contrôlé par la durée d'oxydation. La durée d'oxydation pour un ECR visé est choisie selon l'expérience du CEA sur le même matériau. A la fin de l'oxydation, soit la gaine

tombe par gravité dans un bain d'eau pour effectuer une trempe, soit elle est retirée du four par le haut et refroidie à l'air.

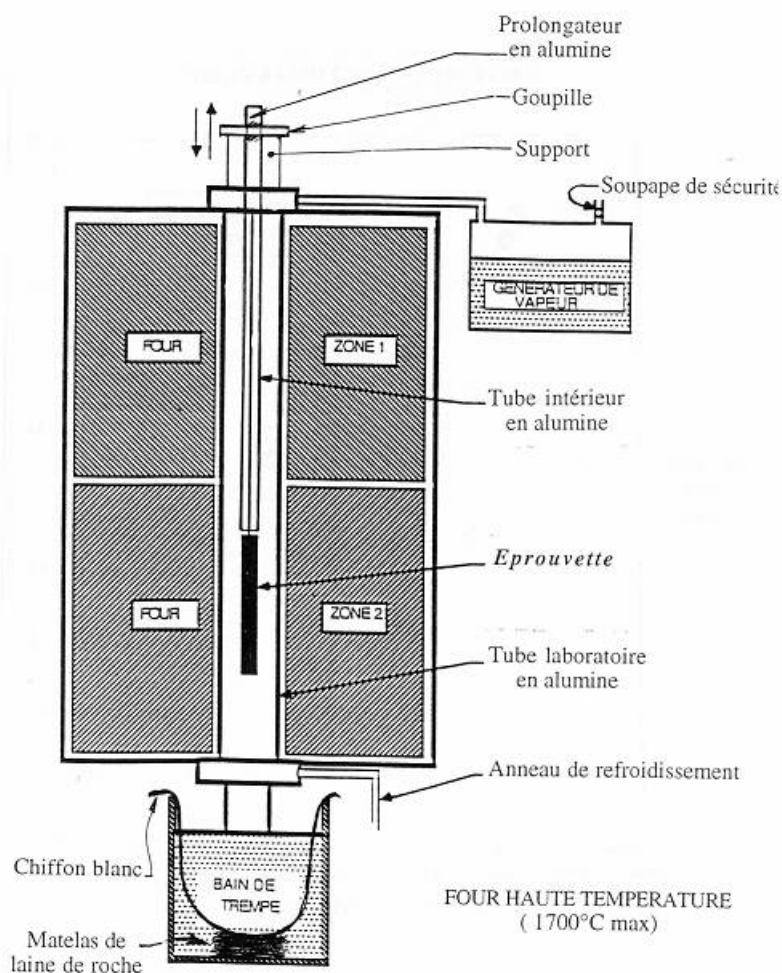


Figure 2-7 : Dispositif DEZIROX au CEA (BRAC01).

### 2.3.4 Résultats de l'essai d'oxydation

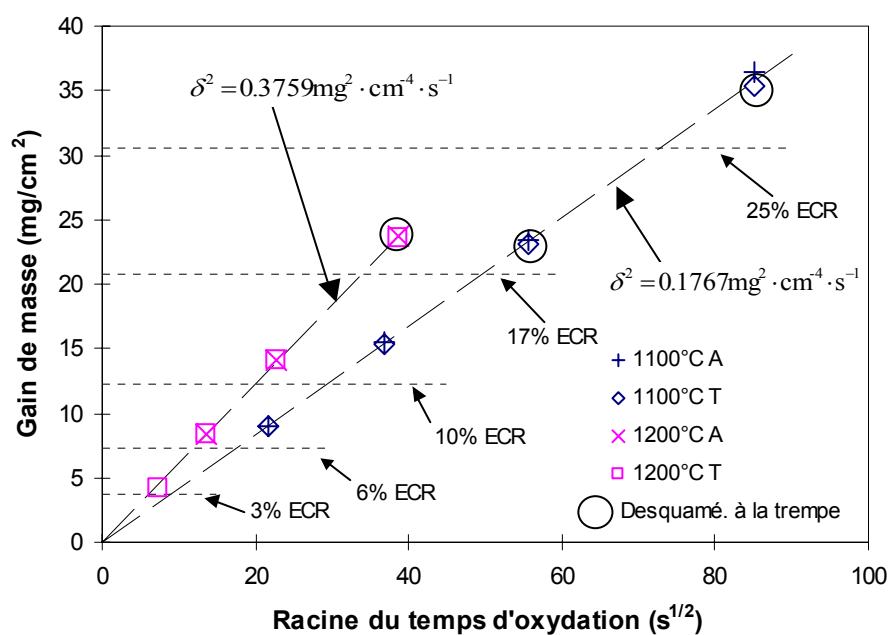
Après le refroidissement la gaine est pesée<sup>3</sup> pour mesurer le gain de masse dû à l'oxydation. Le Tableau 2-6 présente les résultats des essais d'oxydation et de refroidissement. Les ECR réels sont calculés à partir des gains de masse mesurés par (2-5). Les ECR réels sont plus élevés que ceux visés. La cinétique d'oxydation obéit bien à une loi parabolique (Figure 2-8). Les constantes de cette loi parabolique sont de  $0,1767 \text{ mg}^2 \cdot \text{cm}^{-4} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $0,3759 \text{ mg}^2 \cdot \text{cm}^{-4} \cdot \text{s}^{-1}$  pour  $1100^\circ\text{C}$  et  $1200^\circ\text{C}$  respectivement. Une comparaison avec les constantes de lois paraboliques obtenues par d'autres études montre que la cinétique obtenue dans cette étude est proche de celle d'Urbanic [URBA78] (Tableau 2-7).

<sup>3</sup> Pour les gaines qui présentent une desquamation de l'oxyde pendant la trempe, les morceaux desquamés sont ramassés et pesés avec la gaine.

**Tableau 2-6 : Résultats de l'essai d'oxydation et de refroidissement.**

T oxyd, (°C)	Refroid.	ECR visé (%)	Temps (s)	Gain de masse (mg/cm <sup>2</sup> )	ECR réel (%)	Remarque
1100	à l'air	6	467	8,92	7,31	
		10	1349	15,45	12,66	
		17	3098	23,47	19,23	
		25	7243	36,48	29,89	
	trempé	6	467	9,05	7,41	
		10	1349	15,29	12,53	
		17	3098	23,07	18,90	Desquamation
		25	7243	35,33	28,95	Desquamation
1200	à l'air	6	187	8,40	6,88	
		10	520	14,16	11,60	
		17	1492	23,66	19,39	
	trempé	3	55	4,11	3,37	
		6	187	8,32	6,82	
		10	520	14,15	11,59	
		17	1492	23,60	19,34	Desquamation

Les gaines oxydées présentent une couche extérieure noire d'oxyde. Pour les gaines oxydées à plus de 17% d'ECR visé, la couche d'oxyde est partiellement desquamée pendant la trempe (Figure 2-9).

**Figure 2-8 : Cinétiques d'oxydation mesurées.**

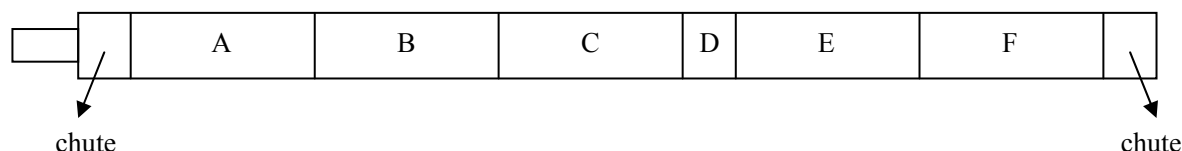
**Tableau 2-7 : Constantes de loi parabolique pour 1100°C et 1200°C sur du Zircaloy-4 détendu.**

	$\delta^2$ (mg <sup>2</sup> ·cm <sup>-4</sup> ·s <sup>-1</sup> ) à 1100°C	$\delta^2$ (mg <sup>2</sup> ·cm <sup>-4</sup> ·s <sup>-1</sup> ) à 1200°C
Cette étude	0,1767	0,3759
Baker et al [BAKE62]	0,2324	0,7214
Pawel et al [PAWE79]	0,1578	0,4265
Leistikow et al [LEIS78]	0,1218	0,3436
Urbanic et al [URBA78]	0,1732	0,3980
Kawasaki et al [KAWA78]	0,1538	0,4237

**Figure 2-9 : Desquamation partielle de la couche de zircone, gaine oxydée à 1100°C à 18,90% d'ECR et trempée.**

### 2.3.5 Découpage des gaines oxydées

A l'issue de l'oxydation, les gaines de 150 mm de long sont découpées en différents tronçons représentés sur la Figure 2-10. Les tronçons A, B, C, E et F de 25 mm de long seront destinés à l'essai EDC. Le tronçon D (10 mm de long) est destiné aux caractérisations et observations.

**Figure 2-10 : Schématisation des découpes des tronçons des gaines oxydées.**

## 2.4 Caractérisations microstructurales de la gaine oxydée

### 2.4.1 Observation au microscope optique de la section des gaines oxydées

A l'issue de l'oxydation, la section du tronçon D (Figure 2-10) des gaines fait l'objet d'une observation au microscope optique. Le tronçon est nickelé et enrobé à chaud dans une résine. La section est polie mécaniquement puis avec de la silice colloïdale.

La Figure 2-11 montre les sections observées au microscope optique des gaines oxydées à 1100°C pour les deux scénarios de refroidissement et pour les ECR visés de 6% à 17%. L'observation met en évidence la présence des trois couches dans les gaines oxydées : une couche externe de zircone (ZrO<sub>2</sub>), une couche intermédiaire  $\alpha$ (O) et une couche interne ex- $\beta$ . La couche de zircone est noire et sous forme colonnaire. La couche  $\alpha$ (O) présente des microfissures radiales.



Pour les gaines avec un ECR supérieur à 10%, à l'interface  $\alpha(\text{O})/\text{ex-}\beta$ , il y a des incursions  $\alpha(\text{O})$  dans la couche  $\text{ex-}\beta$ . Les incursions  $\alpha(\text{O})$  se trouvent aussi bien au sein de la couche  $\text{ex-}\beta$  qu'à l'interface  $\alpha(\text{O})/\text{ex-}\beta$ . La taille des incursions  $\alpha(\text{O})$  augmente avec l'ECR et peut atteindre l'échelle de l'épaisseur de la couche  $\text{ex-}\beta$  pour un ECR visé de 17%. D'ailleurs, par rapport aux gaines trempées, la couche  $\text{ex-}\beta$  des gaines refroidies à l'air présente une structure à « lamelles ».

La gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 17% est partiellement desquamée lors de la trempe, la couche  $\alpha(\text{O})$  dans la zone non desquamée de cette gaine présente d'ailleurs des fissures circonférentielles proches de l'interface  $\text{ZrO}_2/\alpha(\text{O})$ . Cela implique que la desquamation de la couche  $\text{ZrO}_2$  se produit par la rupture dans le sens circonférentiel de la couche  $\alpha(\text{O})$ .

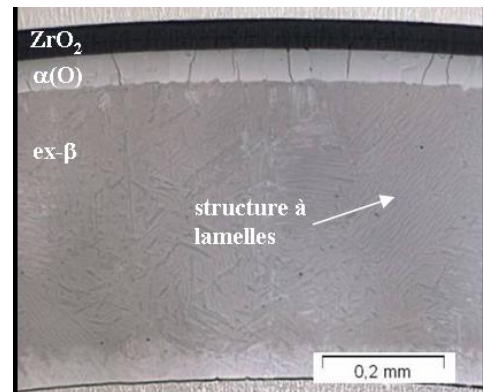
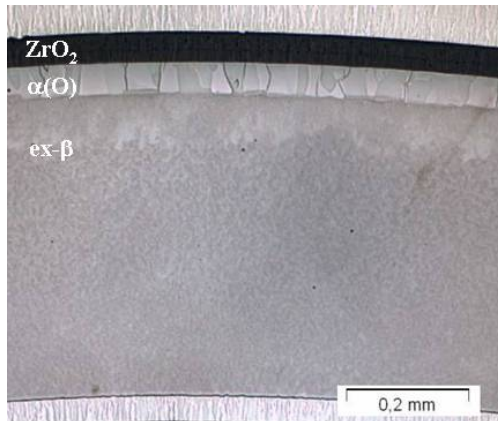
Pour la gaine oxydée à 1100°C puis refroidie à l'air avec un ECR visé de 17%, des fissures radiales dans la couche  $\alpha(\text{O})$  prolongées dans l'incursion  $\alpha(\text{O})$  de la couche  $\text{ex-}\beta$  sont observées.

ECR visé

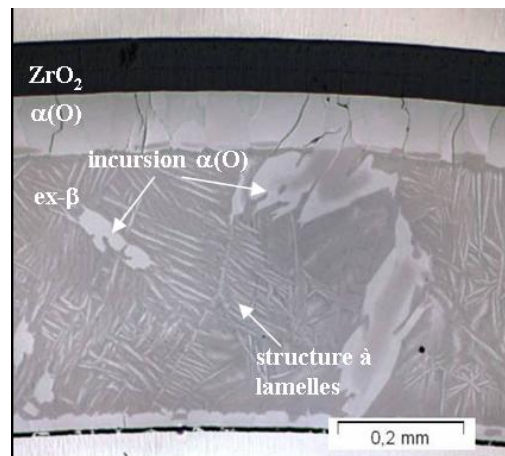
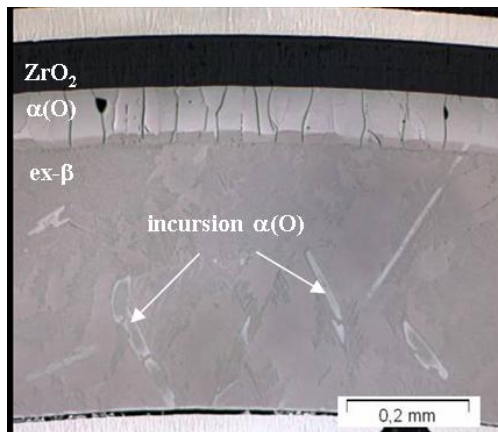
Gaines trempées

Gaines refroidies à l'air

6%



10%



17%

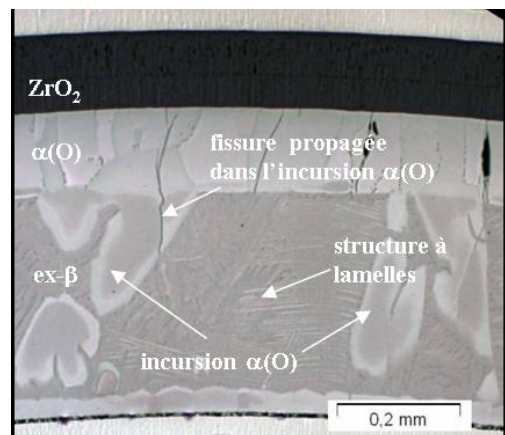
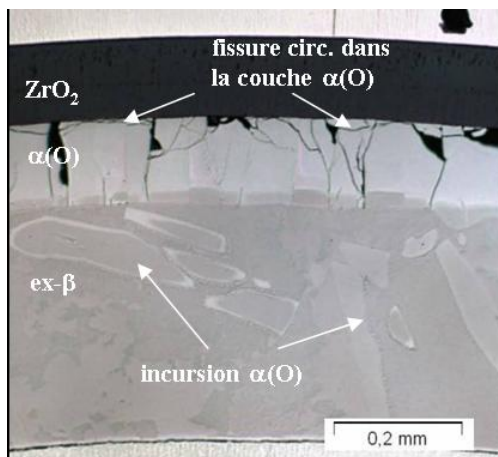
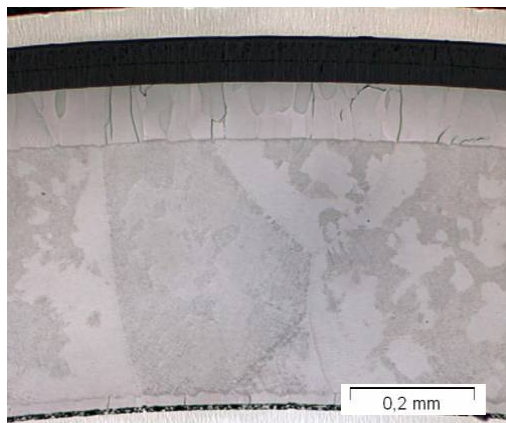
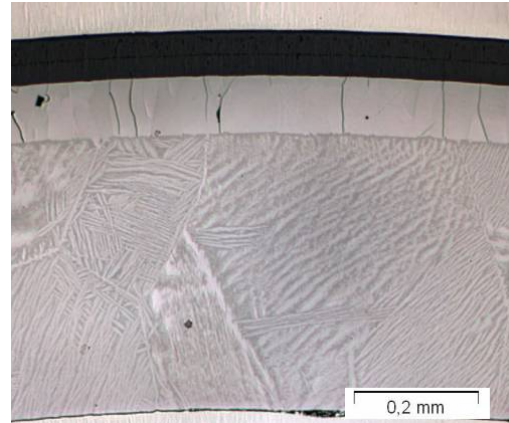


Figure 2-11 : Sections des gaines oxydées à 1100°C observée au microscope optique.

Pour les gaines oxydées à 1200°C les mêmes constatations sont observées à l'exception du fait que la couche ex- $\beta$  des gaines avec un ECR de 10% ne présente aucune incursion  $\alpha(O)$  (Figure 2-12).



Gaine trempée avec un ECR visé de 10%



Gaine refroidie à l'air avec un ECR visé de 10%

**Figure 2-12 : Sections des gaines oxydées à 1200°C observée au microscope optique.**

### 2.4.2 Epaisseur des couches ex- $\beta$ , $\alpha(O)$ et $ZrO_2$

A partir des sections des gaines oxydées observées au microscope optique les épaisseurs des couches ex- $\beta$ ,  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  sont mesurées et présentées dans le Tableau 2-8.

**Tableau 2-8 : Epaisseur moyenne des couches ex- $\beta$ ,  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  des gaines oxydées.**

T oxy. (°C)	Refroid.	ECR réel (%)	Ep. ex- $\beta$ ( $\mu m$ )	Ep. $\alpha(O)$ ( $\mu m$ )	Ep. $ZrO_2$ ( $\mu m$ )
1100	à l'air	7,31	498	55	51
		12,66	425	97	85
		19,23	365	138	130
	trempé	7,41	495	56	52
		12,53	437	91	84
		18,90	362	137	129
	à l'air	6,88	498	57	47
		11,60	442	95	75
		19,39	355	150	123
1200	trempé	6,82	500	54	46
		11,59	440	94	76
		19,34	350	155	122

La cinétique de croissance des épaisseurs des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  obtenue dans cette étude est présentée sur la Figure 2-13. La cinétique de croissance de  $\alpha(O)$  est en bon accord avec la cinétique de Leistikow. La cinétique de croissance de  $ZrO_2$  est proche des cinétiques de Pawel et de Kawasaki à 1200°C. On note que les épaisseurs des trois couches des gaines trempées sont très proches de celles des gaines refroidies à l'air avec le même ECR visé.

La Figure 2-14 montre les épaisseurs des couches dans les gaines oxydées en fonction de l'ECR réel. Les épaisseurs des couches  $ZrO_2$  et de  $\alpha(O)$  augmentent avec l'ECR, et l'épaisseur de la couche ex- $\beta$  diminue avec l'ECR. L'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C augmente légèrement l'épaisseur de la totalité des couches fragiles ( $\alpha(O) + ZrO_2$ ) (Figure 2-14c) et diminue l'épaisseur de la couche ex- $\beta$  qui peut être ductile (Figure 2-14d).

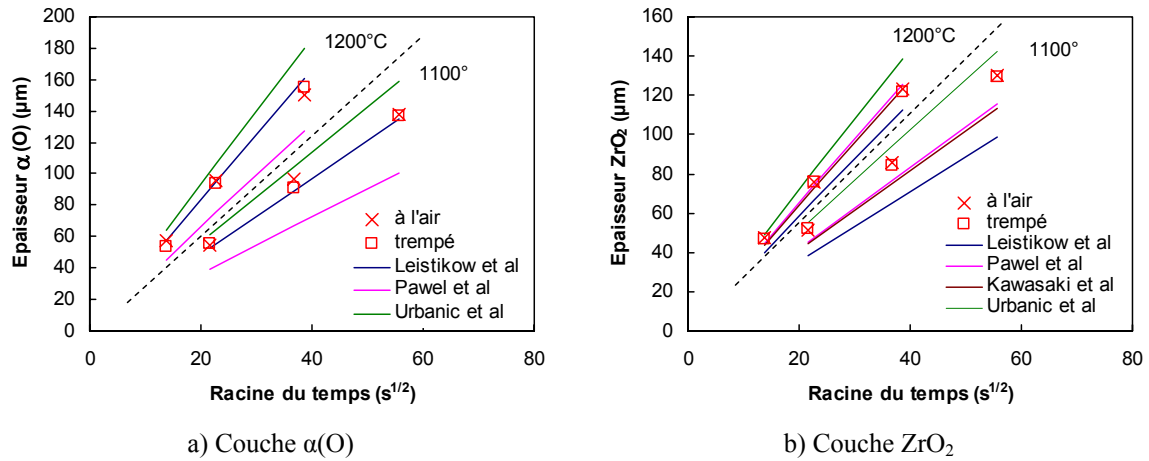


Figure 2-13 : Cinétique de la croissance des couches, a) couche  $\alpha(O)$ , b) couche  $ZrO_2$ .

L'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C augmente légèrement l'épaisseur de la couche  $\alpha(O)$  (Figure 2-14a) mais diminue légèrement l'épaisseur de la couche  $ZrO_2$  (Figure 2-14b). Ces évolutions peuvent être expliquées par les différentes énergies d'activation de la loi d'Arrhenius pour le gain de masse et la croissance des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$ . En effet, les études sur l'oxydation à haute température des gaines en Zy4 [LEIS78, PAWE79, URBA78] montrent la relation suivante entre les énergies d'activation (Tableau 2-2 et Tableau 2-3) :

$$Q_{ZrO_2} < Q_{\Delta w} < Q_{\alpha(O)}$$

La dépendance des épaisseurs de phase  $\alpha(O)$  et de zircone  $ZrO_2$  avec l'ECR peut être décrite par :

$$\frac{e_{\alpha(O)}}{ECR} \propto \exp\left(-\frac{Q_{\alpha(O)} - Q_{\Delta w}}{RT}\right) \quad (2-7)$$

$$\frac{e_{ZrO_2}}{ECR} \propto \exp\left(-\frac{Q_{ZrO_2} - Q_{\Delta w}}{RT}\right) \quad (2-8)$$

Les valeurs de (2-7) augmentent avec la température tandis que les valeurs de (2-8) diminuent.

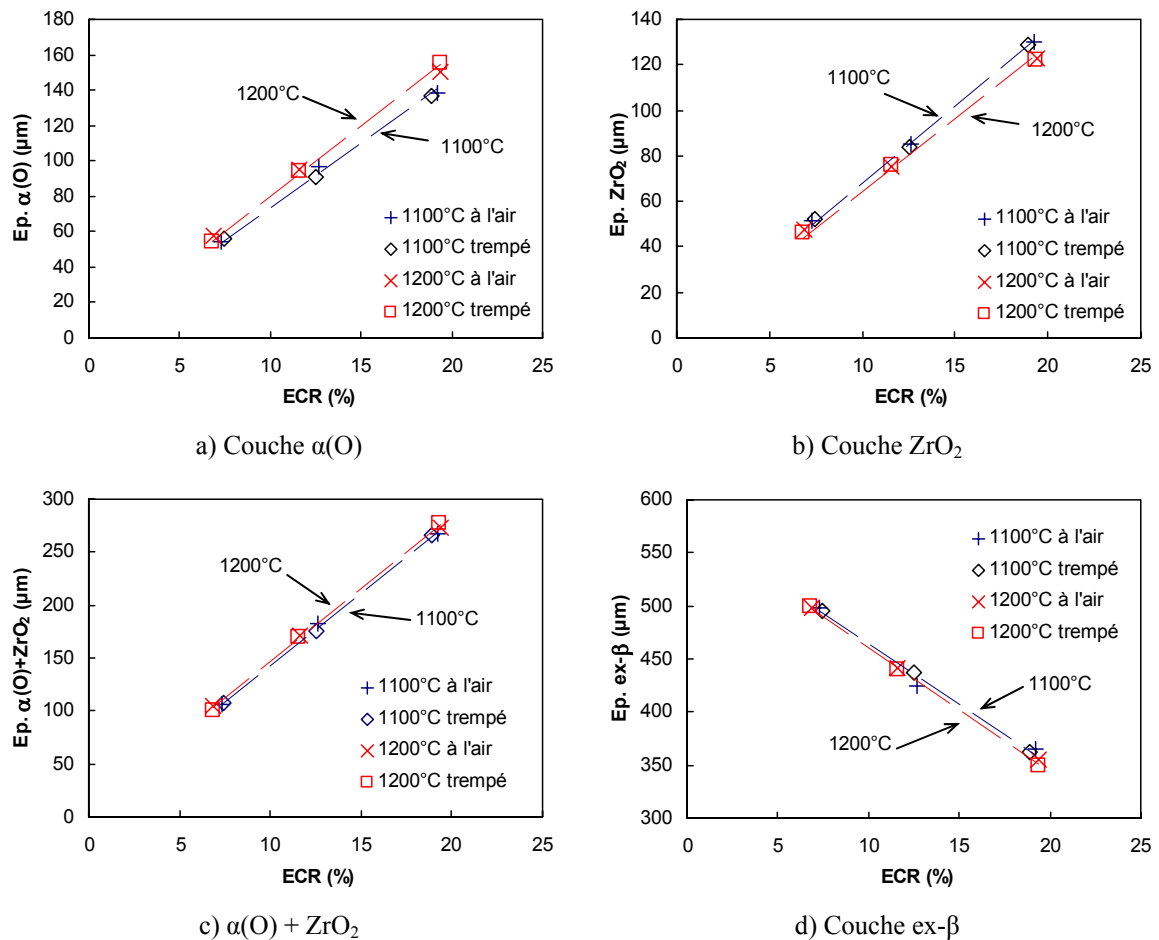


Figure 2-14 : Épaisseurs des couches dans les gaines oxydées en fonction de l'ECR réel.

### 2.4.3 Distribution des éléments dans les gaines oxydées

Les distributions des éléments oxygène, chrome, fer et étain dans les gaines oxydées et refroidies sont obtenues à l'aide d'une analyse à la microsonde. Pour l'analyse à la microsonde, la section polie pour l'observation au microscope optique est repassée au polissage à 1  $\mu m$  afin d'enlever la silice colloïdale résiduelle.

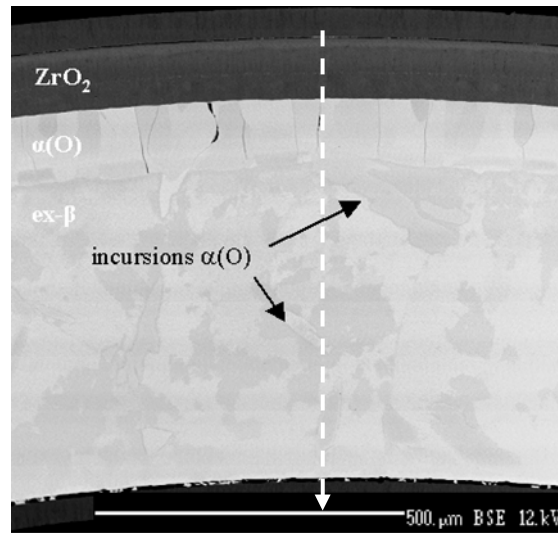
La Figure 2-15 montre les cartographies de teneur en ces éléments dans une zone observée au MEB de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec ECR de 12,53%. Les cartographies de teneur sont qualitatives. La totalité des cartographies est présentée dans l'Annexe A. Les filiations quantitatives de teneurs sur toute l'épaisseur de la gaine sont également obtenues par analyse à la microsonde. La Figure 2-16 présente les filiations quantitatives des teneurs en oxygène, en chrome, en fer et en étain<sup>4</sup> selon la flèche blanche présentée sur la Figure 2-15.

<sup>4</sup> Les limites de détection des teneurs par l'analyse de microsonde sont de 0,2% pour l'oxygène, de 0,08% pour le fer, de 0,05% pour le chrome et de 0,1% pour l'étain en pourcentage massique. Lorsque la teneur est proche de la limite de détection ou inférieure, la valeur donnée par la mesure peut être imprécise et on peut même avoir une valeur négative.

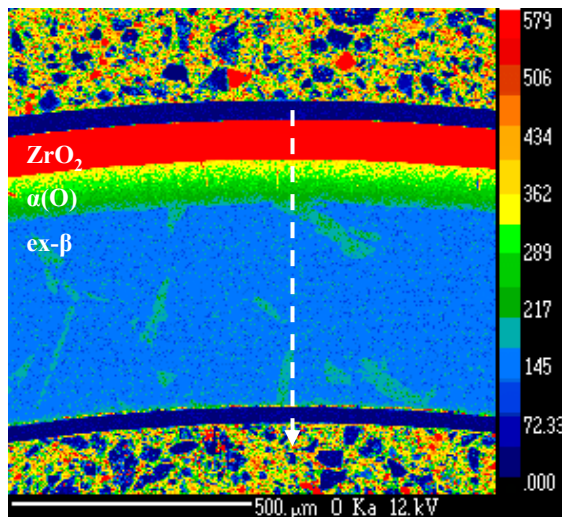
La mesure des distributions des éléments montre que :

- Il existe un gradient de teneur en oxygène décroissant de l'interface  $\text{ZrO}_2/\alpha(\text{O})$  à l'interface  $\alpha(\text{O})/\text{ex-}\beta$  dans la couche de  $\alpha(\text{O})$ .
- Les incursions dans la couche  $\text{ex-}\beta$  présentent une teneur en oxygène plus élevée que la matrice en phase  $\text{ex-}\beta$ . La teneur en oxygène des incursions est proche de celle de la phase  $\alpha(\text{O})$  à l'interface  $\alpha(\text{O})/\text{ex-}\beta$ , ce qui corrobore le fait que les incursions soient en phase  $\alpha(\text{O})$ .
- La phase  $\text{ex-}\beta$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air, en structure à lamelles, présente une forte fluctuation de la teneur en oxygène. La teneur en oxygène est plus élevée au milieu des lamelles qu'au bord (Figure 2-17).
- Le fer et le chrome sont peu présents dans les couches  $\text{ZrO}_2$  et  $\alpha(\text{O})$  ainsi que dans les incursions  $\alpha(\text{O})$ . Le fer et le chrome sont  $\beta$ -gènes et diffusent vers la zone en phase  $\beta$  pendant l'oxydation à haute température. La distribution de chrome dans l' $\text{ex-}\beta$  présente un gradient plus prononcé que la distribution de fer. Cela implique que la diffusion du chrome à haute température dans la phase  $\beta$  est plus lente que le fer ce qui est en accord avec [BRAC01].
- La distribution de l'étain est assez homogène dans les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ex-}\beta$ . En revanche, la distribution de teneur en étain présente un pic au milieu de la couche  $\text{ZrO}_2$ . Cela correspond à une ségrégation de l'étain au milieu de la couche d'oxyde.

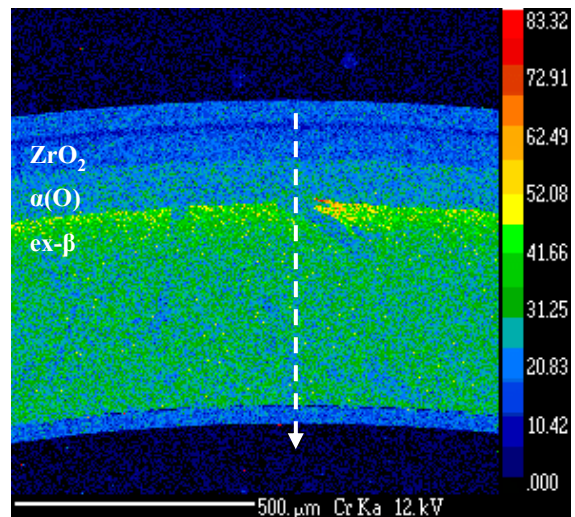




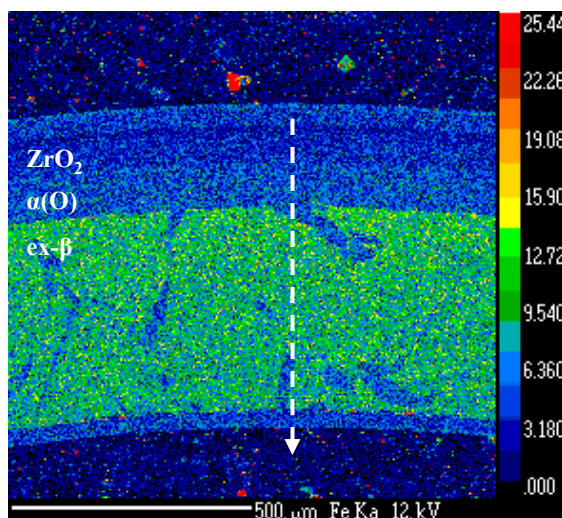
a) Observation au MEB (mode rétro-diffusé)



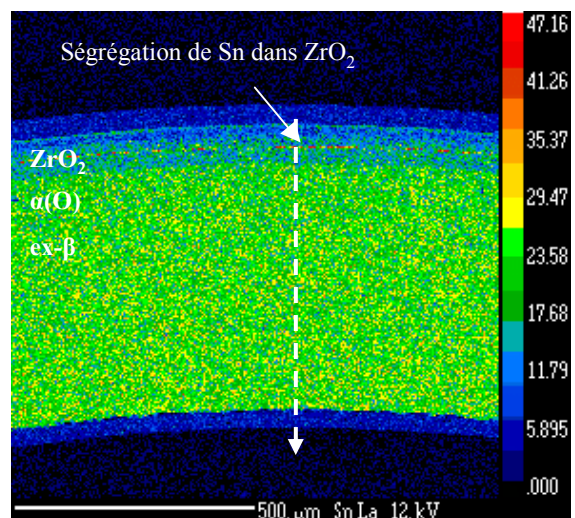
b) cartographie de teneur en oxygène



c) cartographie de teneur en chrome



d) cartographie de teneur en fer



e) cartographie de teneur en étain

**Figure 2-15 : Observations et caractérisations microstructurales sur la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec ECR de 12,53%.**

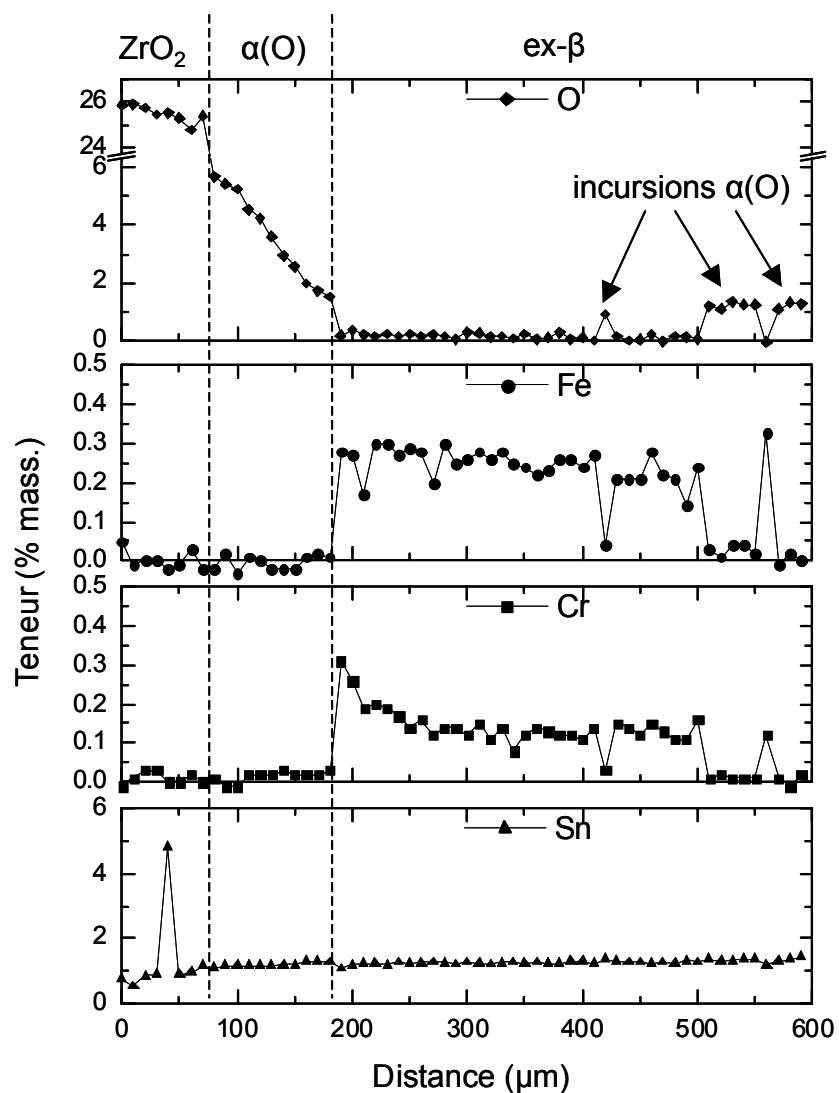
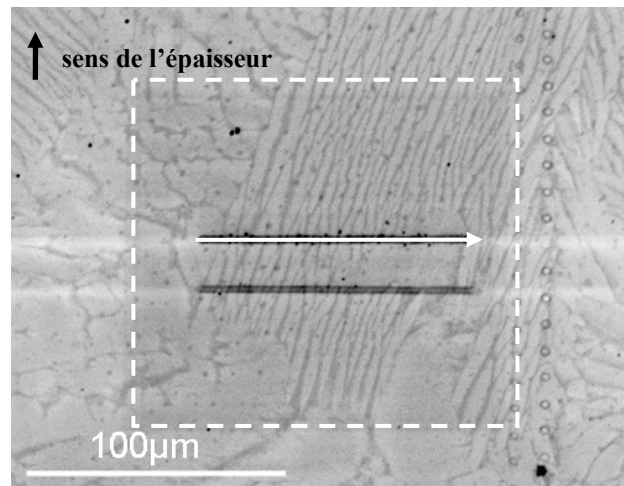
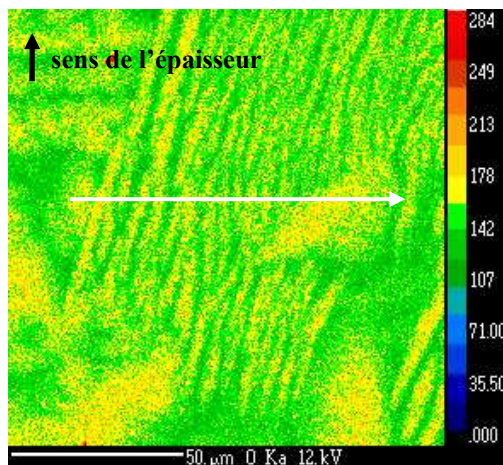


Figure 2-16 : Filiations quantitatives de teneur en oxygène, en fer, en chrome et en étain dans l'épaisseur de la gaine oxydée à 1100°C et puis trempée avec ECR de 12,53% (selon la flèche blanche en pointillés présentée sur la Figure 2-15),

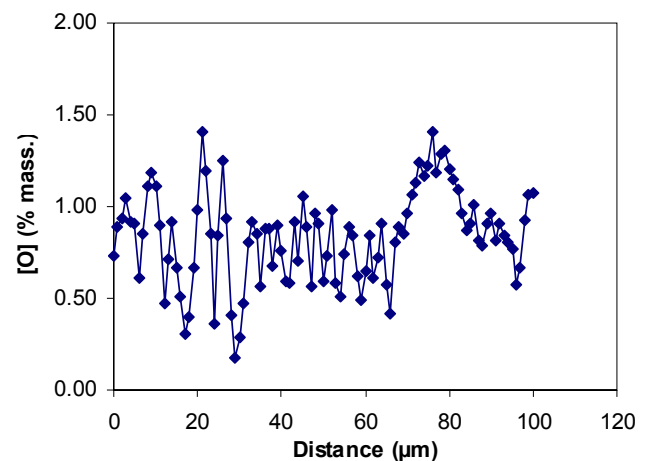




a) Observation au MEB (mode rétro-diffusé)



b) Cartographie de teneur en oxygène



c) Profil de teneur en oxygène (suivant la flèche blanche présentée sur a et b)

**Figure 2-17 : Teneur en oxygène de la structure à lamelles de la phase ex-β de la gaine oxydée à 1200°C puis refroidie à l'air avec un ECR réel de 11,60%.**

#### 2.4.4 Teneur en oxygène des gaines oxydées

Les études [PAWE74, SAWA76, CHUN80] montrent une corrélation entre la teneur en oxygène de la couche ex-β et la ductilité de la gaine oxydée, il est donc important de mesurer la teneur en oxygène dans les différentes gaines oxydées.

La teneur en oxygène dans une phase de zirconium est contrôlée par la limite de solubilité de l'oxygène dans cette phase. La limite de solubilité peut être déterminée à partir du diagramme de phase Zr-O à une température donnée. Par contre les éléments additifs dans un alliage de zirconium influent sur la limite de solubilité. La limite de solubilité peut être calculée en prenant en compte des éléments additifs d'alliage.

Chung et al [CHUN79] a établi un pseudo diagramme de phase Zy-4 - O (Figure 2-18) et les concentrations en oxygène des phases pour les transformations  $(\alpha+\beta) \rightarrow \alpha$  et  $\beta \rightarrow (\alpha+\beta)$  pour  $T > 1280$  K sont données par :

$$\begin{aligned}\ln C_{\alpha} &= -2,28 + 0,535 \ln(T - 1083) \\ \ln C_{\beta} &= 5,02 - 8200/T\end{aligned}\quad (2-9)$$

où  $C_{\alpha}$  et  $C_{\beta}$  sont en % massique et  $T$  en K.

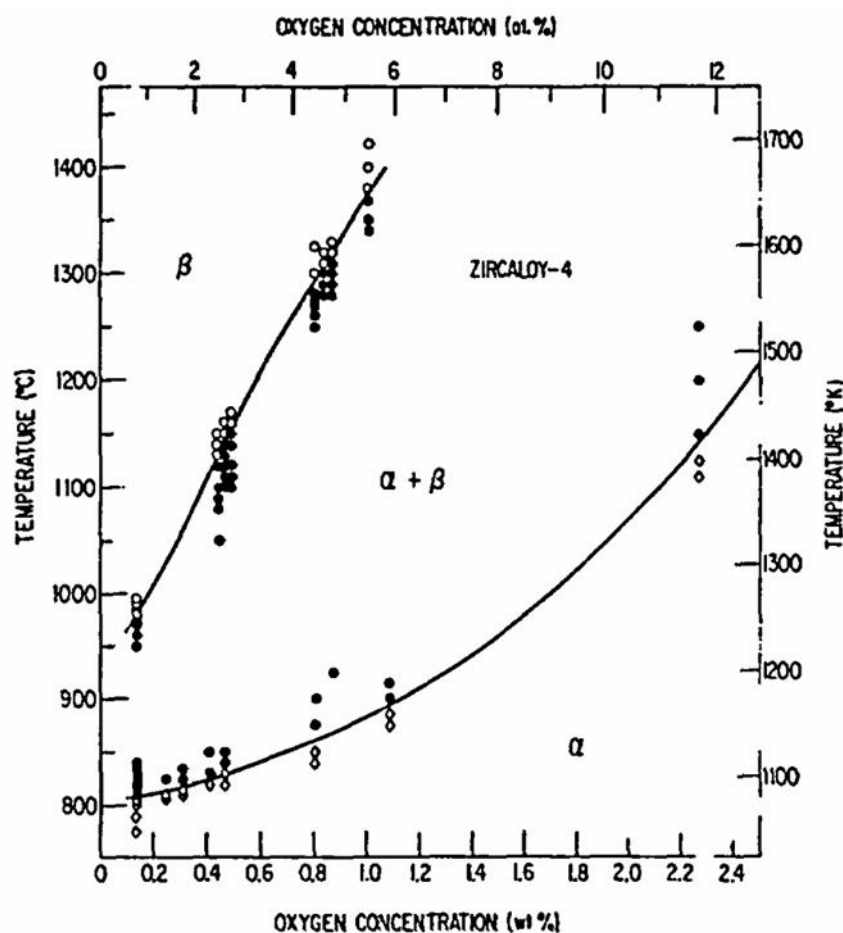


Figure 2-18 : Pseudo-diagramme de phase Zy-4 - O [CHUN79].

Les Tableaux 2-9 à 2-11 montrent les teneurs en oxygène à l'équilibre aux interfaces  $\beta/\alpha+\beta$ ,  $\alpha/\alpha+\beta$  et  $\alpha/\alpha+\text{ZrO}_2$  à 1100°C et à 1200°C calculées théoriquement. Les valeurs « TC Zr - O » et « TC Zy-4 » sont calculées avec ThermoCalc en utilisant la base de ZIRCOBASE à partir du système Zr - O et du système de Zy-4 respectivement, par Corvalan et al [CORV10]. Les valeurs « C-K » sont calculées d'après la relation (2-9) obtenue par Chung et Kassner [CHUN79].

Tableau 2-9 : Teneurs en oxygène (en % massique) à l'équilibre à l'interface  $\beta/\alpha+\beta$  à 1100°C et à 1200°C.

T (°C)	$C_{\beta/\alpha+\beta}$		
	TC Zy-4	TC Zr - O	C-K
1100	0,31	0,40	0,38
1200	0,50	0,61	0,57

**Tableau 2-10 : Teneurs en oxygène (en % massique) à l'équilibre à l'interface  $\alpha/\alpha+\beta$  à 1100°C et à 1200°C.**

T (°C)	$C_{\alpha/\alpha+\beta}$		
	TC Zy-4	TC Zr – O	C-K
1100	1,62	1,52	2,12
1200	2,09	1,98	2,48

**Tableau 2-11 : Teneurs en oxygène (en % massique) à l'équilibre à l'interface  $\alpha/\alpha+\text{ZrO}_2$  à 1100°C et à 1200°C.**

T (°C)	$C_{\alpha/\alpha+\text{ZrO}_2}$	
	TC Zy-4	TC Zr – O
1100	6,85	7,03
1200	6,99	7,16

La teneur en oxygène mesurée des gaines oxydées est présentée ci-dessous.

### Couche $\text{ZrO}_2$

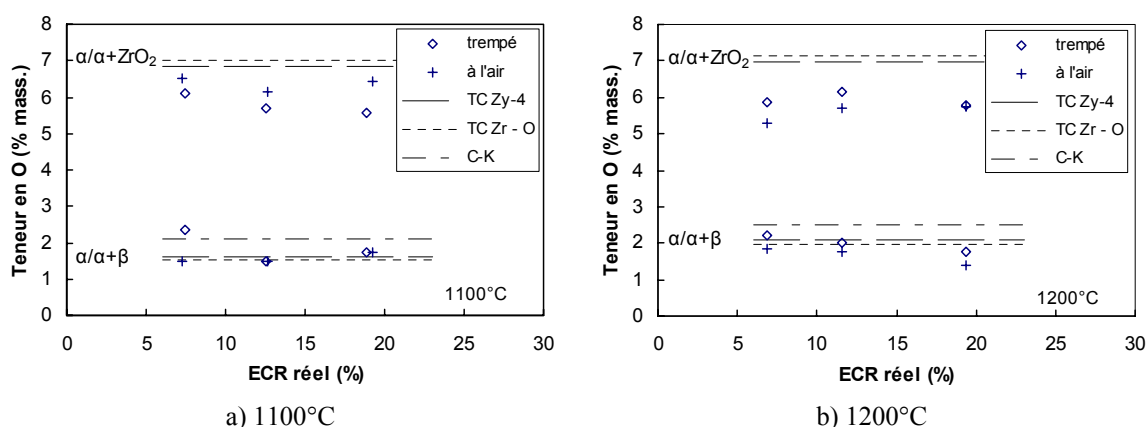
La teneur mesurée en oxygène de la couche  $\text{ZrO}_2$  est très proche de 26% massique, qui est la teneur attendue pour la zircone  $\text{ZrO}_2$ .

### Couche $\alpha(\text{O})$

La couche  $\alpha(\text{O})$  présente un gradient de teneur en oxygène décroissant de l'interface  $\text{ZrO}_2/\alpha(\text{O})$  à l'interface  $\alpha(\text{O})/\beta$ . Les teneurs maximale et minimale en oxygène de la phase  $\alpha(\text{O})$  des gaines oxydées et refroidies sont présentées dans le Tableau 2-12. Il n'y a pas de différence significative entre les teneurs en oxygène de la couche  $\alpha(\text{O})$  des différentes gaines. En effet, les teneurs en oxygène à l'équilibre  $C_{\alpha/\alpha+\text{ZrO}_2}$  et  $C_{\alpha/\alpha+\beta}$  à 1100°C et à 1200°C sont proches (Tableau 2-10 et Tableau 2-11), et les teneurs en oxygène de la phase  $\alpha(\text{O})$  sont bornées par  $C_{\alpha/\alpha+\text{ZrO}_2}$  et  $C_{\alpha/\alpha+\beta}$  (Figure 2-19).

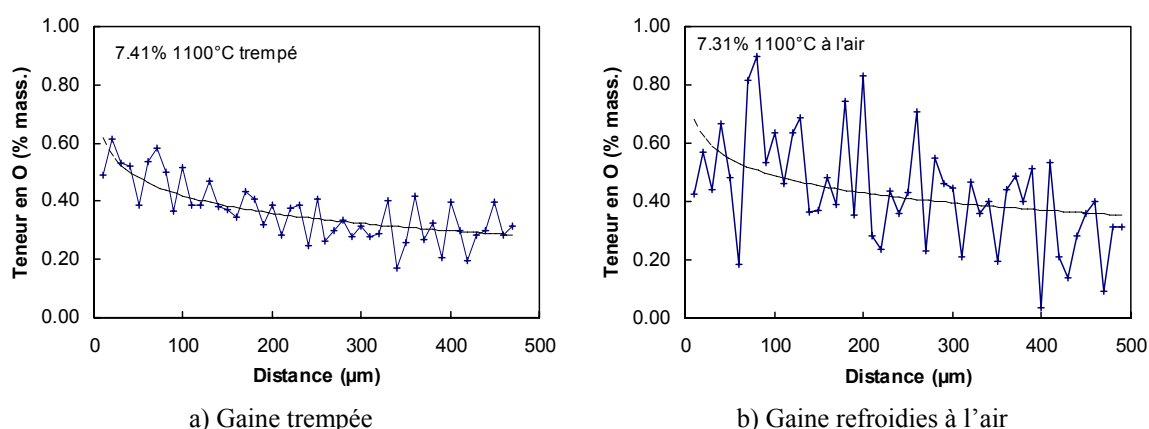
**Tableau 2-12 : Teneur en oxygène de la phase  $\alpha$ (O).**

T oxyd. (°C)	Refroid.	ECR réel (%)	[O] min. (% mass.)	[O] max. (% mass.)
1100	trempe	7,41	2,36	6,09
1100	trempe	12,53	1,49	5,70
1100	trempe	18,90	1,72	5,58
1200	trempe	6,82	2,22	5,85
1200	trempe	11,59	2,01	6,16
1200	trempe	19,34	1,78	5,78
1100	à l'air	7,31	1,48	6,53
1100	à l'air	12,66	1,47	6,14
1100	à l'air	19,23	1,72	6,43
1200	à l'air	6,88	1,83	5,30
1200	à l'air	11,60	1,78	5,71
1200	à l'air	19,39	1,40	5,74

**Figure 2-19 : Teneurs en oxygène maximale et minimale dans la couche  $\alpha$ (O) des gaines oxydées, a) gaines oxydées à 1100°C, b) gaines oxydées à 1200°C.**

### Couche ex- $\beta$

La Figure 2-20 montre la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées à 1100°C avec un ECR visé de 6%. Un gradient décroissant de teneur en oxygène vers l'intérieur de la gaine est constaté. Le gradient est lié à la diffusion de l'oxygène dans la phase  $\beta$  à haute température. La distribution de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  de la gaine refroidie à l'air présente une fluctuation importante, qui est liée à la structure à lamelles.



**Figure 2-20 : Distribution de l'oxygène dans l'ex-β en fonction de la distance de l'interface  $\alpha(O)/ex-\beta$  des gaines oxydées à 1100°C avec un ECR visé de 6%, a) gaine trempée, b) gaine refroidie à l'air.**

La couche ex-β des gaines oxydées peut comporter des incursions  $\alpha(O)$ . Le Tableau 2-13 présente la moyenne et l'écart-type des teneurs en oxygène de la matrice de la couche ex-β en excluant les incursions  $\alpha(O)$ . La teneur en oxygène des incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex-β est présentée dans le Tableau 2-14.

**Tableau 2-13 : Teneur en oxygène dans l'ex-β.**

T oxyd. (°C)	Refroid.	ECR réel (%)	[O] ex-β moy. (% mass.)	Écart type (% mass.)	Remarque
1100	trempé	7,41	0,34	0,11	
1100	trempé	12,53	0,09	0,09	incursion $\alpha(O)$
1100	trempé	18,90	0,16	0,11	incursion $\alpha(O)$
1200	trempé	6,82	0,36	0,16	
1200	trempé	11,59	0,46	0,13	
1200	trempé	19,34	0,33	0,09	incursion $\alpha(O)$
1100	à l'air	7,31	0,36	0,22	
1100	à l'air	12,66	0,27	0,25	incursion $\alpha(O)$
1100	à l'air	19,23	0,40	0,20	incursion $\alpha(O)$
1200	à l'air	11,60	0,29	0,28	
1200	à l'air	19,39	0,25	0,36	incursion $\alpha(O)$

**Tableau 2-14 : Teneur en oxygène des incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex-β.**

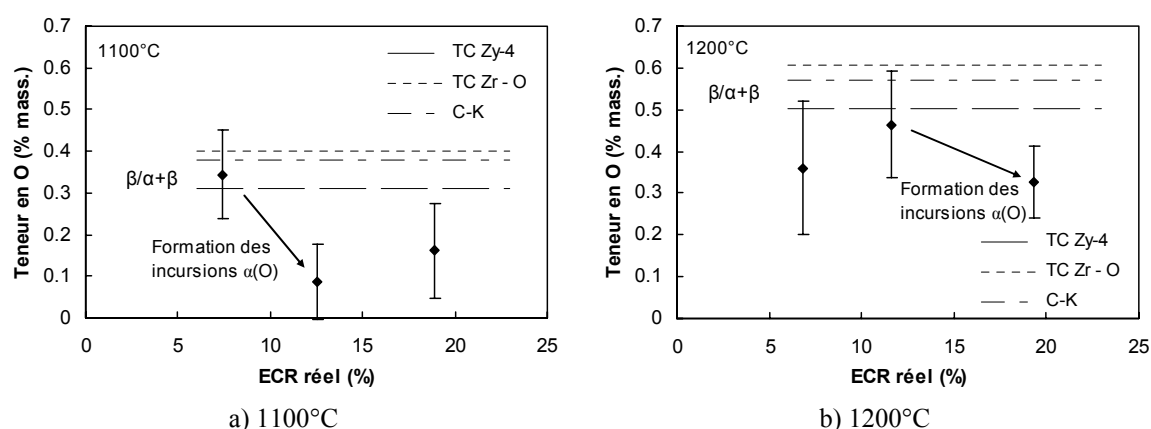
T oxyd. (°C)	Refroid.	ECR réel (%)	[O] incursion $\alpha(O)$ (% mass.)	
			moyenne	écart type
1100	trempé	12,53	1,17	0,13
1100	trempé	18,90	1,23	0,14
1200	trempé	19,34	1,67	0,10
1100	à l'air	12,66	-	-
1100	à l'air	19,23	1,70	0,17
1200	à l'air	19,39	1,38	0,11

Pour les gaines trempées, comme la vitesse de refroidissement est rapide, l'oxygène n'a pas le temps de diffuser, la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$  de la gaine trempée est égale à la teneur en oxygène de la phase  $\beta$  à haute température avant la trempe. La Figure 2-21 montre l'évolution de la teneur en oxygène de la matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines trempées en fonction du niveau d'oxydation décrit par l'ECR réel. A 1100°C, la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$  de la gaine avec un ECR de 7,41% est proche de la limite de solubilité de la phase  $\beta$  à haute température (Figure 2-21a). L'augmentation du niveau d'oxydation augmente la prise de l'oxygène dans la phase  $\beta$  à haute température. La teneur en oxygène dans la phase  $\beta$  peut atteindre la limite de solubilité, et des incursions  $\alpha(O)$  peuvent précipiter. La couche ex- $\beta$  de la gaine avec un ECR de 12,53% présente ainsi des incursions  $\alpha(O)$ . On peut constater que la précipitation des incursions  $\alpha(O)$  baisse la teneur en oxygène de la phase  $\beta$  (Figure 2-21a). Lorsque la gaine continue à s'oxyder, la taille des incursions  $\alpha(O)$  et la teneur en oxygène de la phase  $\beta$  augmentent (Figure 2-21a).

A 1200°C, la solubilité de l'oxygène dans la phase  $\beta$  augmente par rapport à l'oxydation à 1100°C. La solubilité en oxygène de la phase  $\beta$  est atteinte pour un ECR réel entre 11,59% et 19,34% (Figure 2-21b). La couche ex- $\beta$  de la gaine avec un ECR réel de 19,34% présente ainsi des incursions  $\alpha(O)$  et une teneur en oxygène de la matrice plus faible que la gaine avec un ECR de 11,59%.

La matrice de la couche ex- $\beta$  présente une teneur en oxygène des gaines oxydées avec un ECR visé de 17% plus faible que les gaines oxydées avec un ECR visé de 6%. L'effet de l'augmentation du niveau d'oxydation réside plutôt dans la formation des incursions  $\alpha(O)$  que dans l'augmentation de la teneur en oxygène de la matrice de la couche ex- $\beta$ .

Pour les gaines trempées avec un ECR réel de l'ordre de 7%, l'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C n'influe pas sur la teneur en oxygène moyenne de la couche ex- $\beta$ , par contre, elle augmente la dispersion de la teneur en oxygène.



**Figure 2-21 : Teneur moyenne en oxygène avec l'écart type de la matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées puis trempées, a) gaines oxydées à 1100°C, b) gaines oxydées à 1200°C.**

Les teneurs en oxygène des incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex- $\beta$  des différentes gaines oxydées sont proches (Figure 2-22). Elles sont plus élevées que la teneur en oxygène à

l'équilibre à l'interface  $\beta/\alpha+\beta$  mais plus faibles que la teneur en oxygène à l'équilibre à l'interface  $\alpha/\alpha+\beta$  calculée selon le pseudo diagramme de phase Zy-4 – O « C-K ».

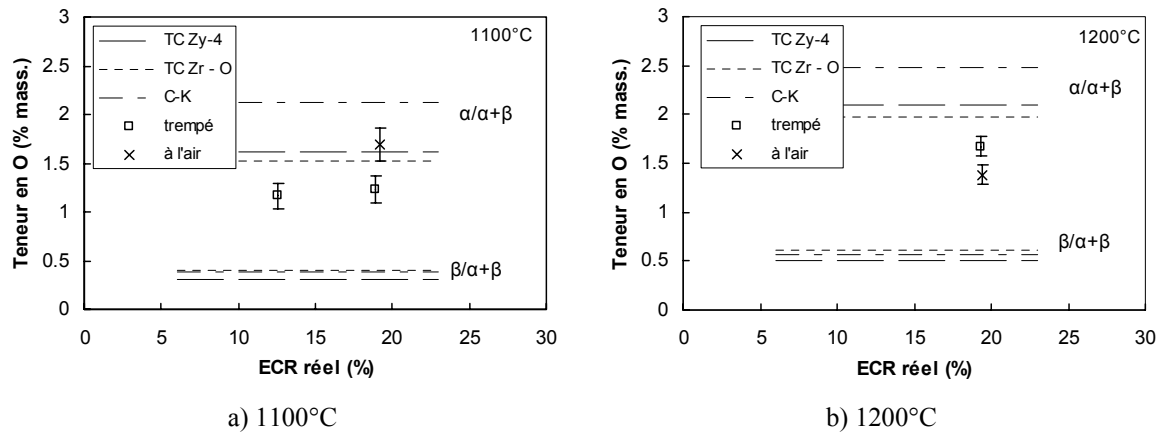


Figure 2-22 : Teneur en oxygène des incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex- $\beta$ .

### 2.4.5 Nano-indentation

#### Nano-dureté H et module d'Young E

La nano-dureté H et le module d'Young E des gaines oxydées sont mesurés par la technique de nano-indentation. L'intégralité des résultats de la nano-indentation est présentée dans l'Annexe B. La Figure 2-23 montre un exemple des distributions de H et de E dans la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR réel de 12,53%. Il est constaté que :

- La couche  $\alpha(O)$  a un gradient décroissant de H et E que nous pouvons rapprocher du gradient de teneur en oxygène présenté dans la section 2.4.4 ;
- La couche  $ZrO_2$  a une dispersion de E et H qui est peut-être liée à sa forme colonnaire ;
- H et E des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  sont plus élevés que ceux de la couche ex- $\beta$  ;
- Les incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex- $\beta$  ont des H et E plus élevés que la matrice de la couche ex- $\beta$ .

Les H et E moyens de la matrice de la couche ex- $\beta$  (hors incursions  $\alpha(O)$ ) et les H et E maximales et minimales de la phase  $\alpha(O)$  des gaines oxydées sont présentés dans le Tableau 2-15 et le Tableau 2-16. L'évolution du module d'Young et de la nano-dureté de la matrice de la couche ex- $\beta$  en fonction de l'ECR réel sont tracées sur la Figure 2-24 et la Figure 2-25. On y voit que :

- Il n'y a pas une différence significative entre les modules d'Young E de la matrice de la couche ex- $\beta$  des différentes gaines oxydées (Figure 2-24) ;
- La matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air a une nano-dureté H plus basse que celles des gaines trempées (Figure 2-25).

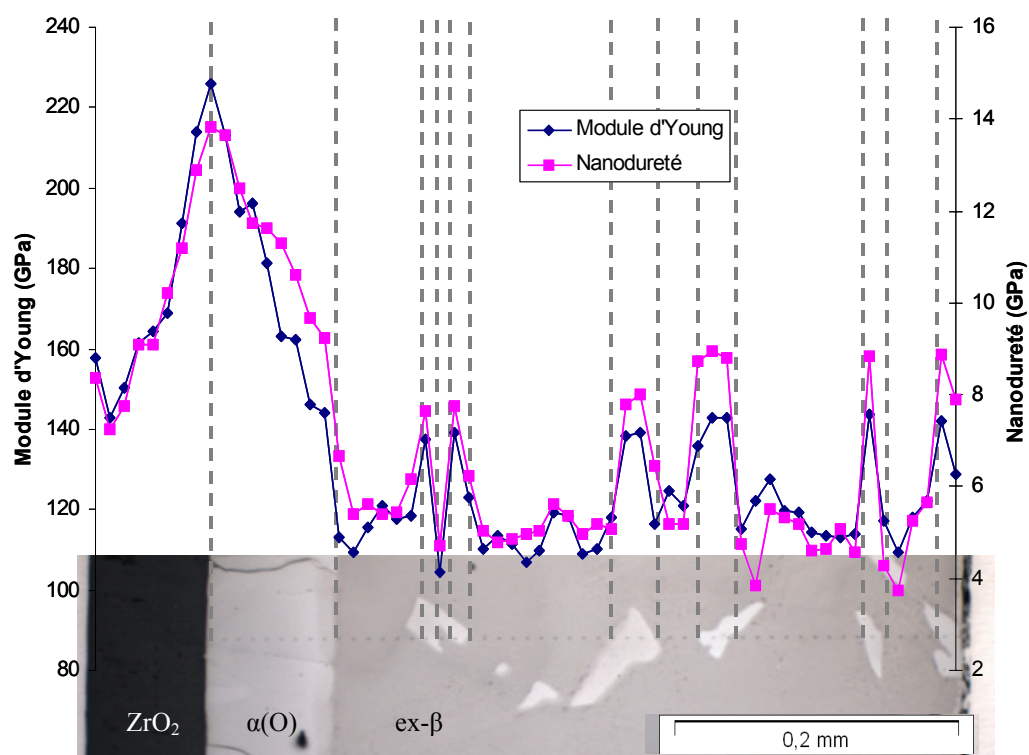


Figure 2-23 : Nano-durété H et module d'Young E de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR de 12,53%.

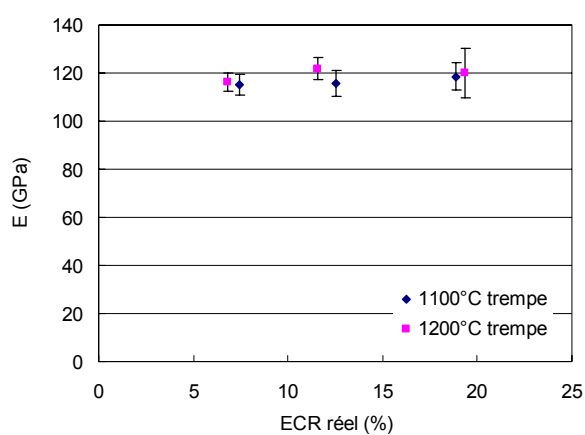
Tableau 2-15 : Module d'Young E et nano-dureté H de la couche  $\alpha(O)$  mesurés par nano-indentation.

T. oxyd. (°C)	Refroid,	ECR réel (%)	E (GPa)		H (GPa)	
			min.	max.	min.	max.
1100	trempé	7,41	139	213	8,74	13,57
1100	trempé	12,53	144	226	9,23	13,82
1100	trempé	18,90	155	224	8,69	13,98
1200	trempé	6,82	139	216	8,65	13,60
1200	trempé	11,59	148	218	9,06	13,66
1200	trempé	19,34	144	204	9,41	13,18
1100	à l'air	7,31	125	197	9,28	13,79
1100	à l'air	12,66	144	206	8,59	13,71
1100	à l'air	19,23	143	215	8,68	13,52
1200	à l'air	6,88	134	205	8,60	13,74
1200	à l'air	11,60	144	222	9,02	13,51
1200	à l'air	19,39	140	223	8,70	14,53

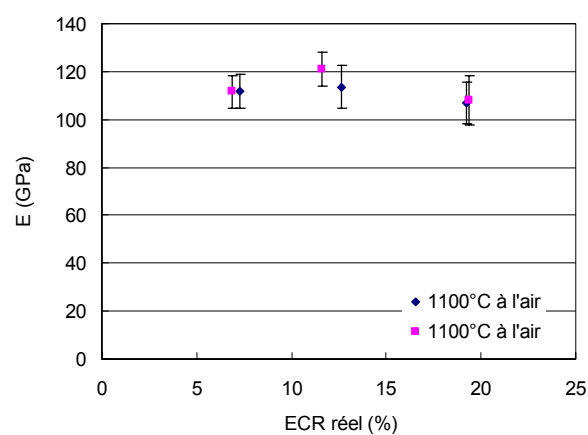


**Tableau 2-16 : Module d'Young E et nano-dureté H de la matrice de la couche ex- $\beta$  mesurés par nano-indentation.**

T. oxyd. (°C)	Refroid.	ECR réel (%)	E (GPa)		H (GPa)	
			moy.	écart type	moy.	écart type
1100	trempe	7,41	115,05	4,14	5,12	0,46
1100	trempe	12,53	115,77	5,32	5,17	0,63
1100	trempe	18,90	118,62	5,45	5,72	0,37
1200	trempe	6,82	116,25	4,00	5,45	0,36
1200	trempe	11,59	121,87	4,80	5,59	0,46
1200	trempe	19,34	120,19	10,24	6,08	0,85
1100	à l'air	7,31	111,56	7,08	4,12	0,70
1100	à l'air	12,66	113,55	9,05	3,67	0,95
1100	à l'air	19,23	106,93	8,58	3,40	0,75
1200	à l'air	6,88	111,65	6,72	4,29	0,92
1200	à l'air	11,60	121,09	6,89	5,01	1,05
1200	à l'air	19,39	108,07	10,34	4,24	0,79



a) gaines trempées



b) gaines refroidies à l'air

**Figure 2-24 : Evolution du module d'Young E de la matrice de la couche ex- $\beta$  en fonction de l'ECR réel.**

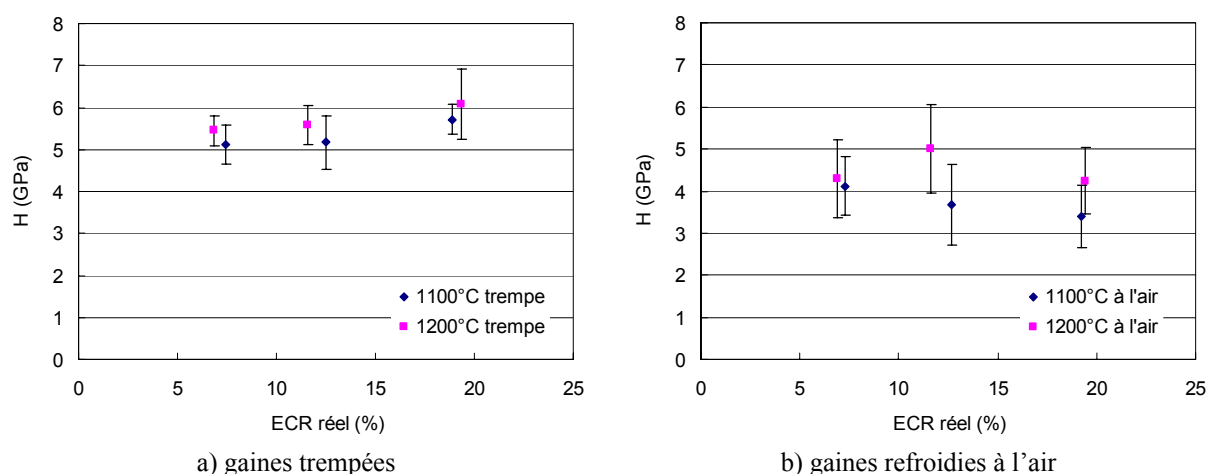


Figure 2-25 : Evolution de la nano-dureté H de la matrice de la couche ex-β en fonction de l'ECR réel.

### Corrélation H-[O] et E-[O]

Il y a une ressemblance entre les distributions de H et E et la distribution de la teneur en oxygène [O] dans les couches  $\alpha(O)$  et ex-β. Cela nous amène à établir des corrélations H-[O] et E-[O] pour les couches  $\alpha(O)$  et ex-β.

Comme la mesure de la teneur en oxygène et la nano-indentation n'ont pas été effectuées au même endroit de la gaine, une corrélation directe entre [O] et E ou H n'est pas possible. Les corrélations sont établies en corrélant les valeurs moyennes de [O], E et H de la matrice de la couche ex-β des gaines trempées, et les valeurs minimale et maximale de [O], E et H de la couche  $\alpha(O)$ . Les valeurs de la couche ex-β des gaines refroidies à l'air ne sont pas prises en compte pour établir les corrélations à cause de leur grande dispersion. Les corrélations H-[O] et E-[O] sont présentées sur la Figure 2-26, qui montre une dépendance quasi linéaire entre la teneur en oxygène [O] et E et H.

Stern [STER07] a obtenu également une corrélation entre la teneur en oxygène et la nano-dureté des phases  $\alpha(O)$  et ex-β. Une comparaison avec la corrélation de Stern montre que les deux corrélations sont proches aux teneurs situées à la limite basse de  $\alpha(O)$  (Figure 2-26). Par contre, aux teneurs rencontrées dans la couche ex-β la nano-dureté mesurée dans notre étude est plus élevée (Figure 2-26).

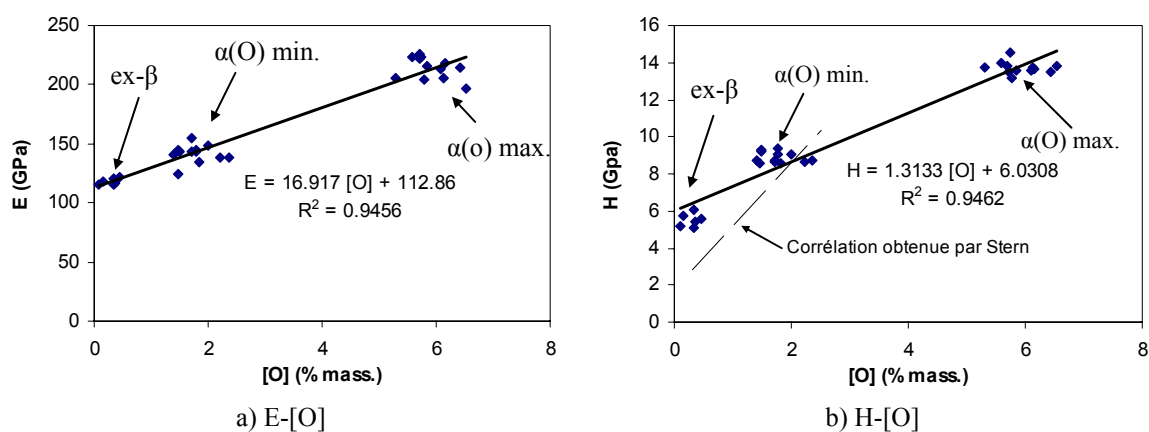


Figure 2-26 : a) Corrélations entre la teneur en oxygène [O] et le module d'Young E et la nano-dureté H.

Il faut noter que les corrélations établies sont valables dans la plage de teneur en oxygène entre 0 et 7%. La validité des corrélations n'est pas assurée dans la plage de teneur en oxygène pour la phase ex- $\beta$  ( $[O] < 0,6\%$  d'après le Tableau 2-9) d'autant plus que rien ne permet de justifier le choix d'une corrélation linéaire aux faibles teneurs en oxygène.

### Module d'Young de la couche ex- $\beta$

La corrélation entre la teneur d'oxygène et le module d'Young de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées (Figure 2-26) montre un module d'Young  $E=115$  GPa pour une gaine non-oxydée ( $[O] \approx 0,1\%$ ). Or le module d'Young classique des alliages de zirconium est de 97 GPa. Le module d'Young mesuré par la technique de nano-indentation peut être supérieur au module d'Young macroscopique de la couche ex- $\beta$ .

Stern [STER07] a mesuré le module d'Young des plaques Zy-4 en phase homogène contenant différentes teneurs d'oxygène par les techniques de nano-indentation et d'acoustique. Bunnell et al [BUNN83] a mesuré le module d'Young dans les sens axial et circonférentiel des gaines Zy-4 en phase homogène contenant différentes teneurs d'oxygène. Ces résultats montrent que la surestimation de la mesure du module d'Young par la technique de nano-indentation (Figure 2-27). Pour la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées qui a une teneur en oxygène inférieure à 1% massique, la valeur  $E=100$  GPa qui est légèrement supérieure au module d'Young de la gaine Zy-4 vierge sera utilisée dans la simulation présentée dans le chapitre 5.

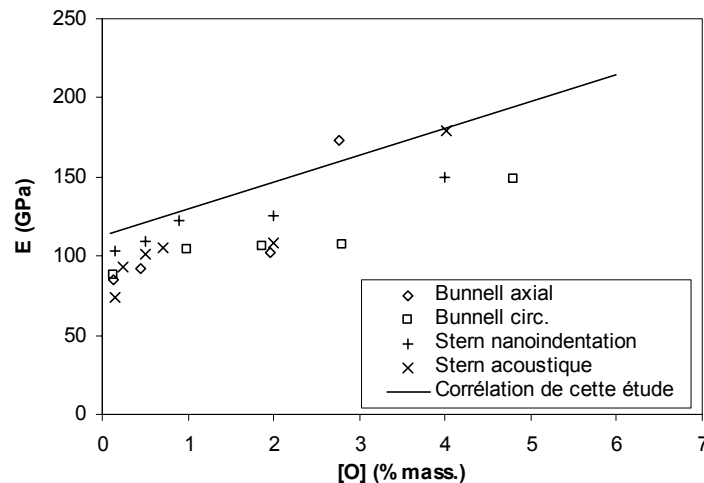


Figure 2-27 : Module d'Young en fonction de la teneur en oxygène.

## 2.5 Conclusions

Les essais d'oxydation isotherme simple-face à haute température ont été effectués sur les gaines en Zy4 détendu dans le dispositif DEZIROX au CEA. Trois paramètres d'oxydation ont été pris en compte dans l'essai d'oxydation. L'essai d'oxydation a été effectué avec des niveaux d'oxydation de 3% jusqu'à 25% d'ECR visé, des températures

d'oxydation de 1100°C et 1200°C et deux scénarios de refroidissement (la trempe à l'eau et le refroidissement à l'air).

Le niveau d'oxydation réel (ECR réel) mesuré par le gain de masse est légèrement plus élevé que celui visé. Les gaines oxydées avec un ECR visé de 17% connaissent une desquamation partielle de la couche  $\text{ZrO}_2$  lors de la trempe aussi bien pour la température d'oxydation de 1100°C que pour 1200°C.

Une observation au microscope optique, une analyse par micro-sonde et des essais de nano-indentation ont été effectués sur la section droite des gaines oxydées.

L'observation au microscope optique montre une couche  $\text{ZrO}_2$  noire sous forme colonnaire, une couche  $\alpha(\text{O})$  multifissurée, et une couche ex- $\beta$  dans les gaines oxydées. La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air présente une structure à lamelles.

La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées à 1100°C avec un ECR visé supérieur à 10% et des gaines oxydées à 1200°C avec un ECR visé supérieur à 17% présente des incursions  $\alpha(\text{O})$  aussi bien à l'interface ex- $\beta/\alpha(\text{O})$  qu'au sein de la couche ex- $\beta$ . La formation des incursions est contrôlée par la limite de solubilité de l'oxygène dans la phase  $\beta$  à haute température. La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées à 1100°C avec un ECR visé de 10% possède des incursions  $\alpha(\text{O})$  alors que celle des gaines oxydées à 1200°C avec un même ECR visé n'a pas d'incursions  $\alpha(\text{O})$  car la solubilité de l'oxygène dans la phase  $\beta$  est augmentée par l'augmentation de la température.

L'analyse par micro-sonde montre qu'il existe un gradient décroissant de teneur en oxygène dans la couche  $\alpha(\text{O})$  de l'interface  $\text{ZrO}_2/\alpha(\text{O})$  vers l'interface  $\alpha(\text{O})/\text{ex-}\beta$ . Un gradient de teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  est également constaté. La couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air présente une dispersion importante de teneur en oxygène à cause de sa structure à lamelles. On note également que la formation des incursions  $\alpha(\text{O})$  dans la couche ex- $\beta$  est accompagnée d'une baisse de la teneur en oxygène dans la matrice de cette couche.

Le module d'Young  $E$  et la nano-dureté mesurés par nano-indentation présentent une dispersion importante dans la couche  $\text{ZrO}_2$  et un gradient dans la couche  $\alpha(\text{O})$ . Le module d'Young de la couche ex- $\beta$  semble ne pas être influencé par les paramètres d'oxydation pris en compte dans cette thèse. Des corrélations linéaires entre la teneur en oxygène et le module d'Young  $E$  et entre la teneur en oxygène et la nano-dureté ont été établies. Le module d'Young  $E$  mesuré par la nano-indentation est plus élevé que le module d'Young macroscopique qui peut être mesuré par des essais mécaniques.

### 3 Essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) sur gaines oxydées

L'essai EDC est choisi comme moyen d'essais pour caractériser le comportement mécanique des gaines oxydées présentées dans le chapitre 2. Dans le cadre de la thèse, l'essai EDC a été développé au sein d'EDF R&D. Le montage de l'essai EDC est doté d'un système de mesure de déformation par stéréo-corrélation d'images. Les résultats d'un essai EDC sont présentés sous forme des courbes force-déplacement et force-déformation.

#### 3.1 Essai d'Expansion Due à la Compression (EDC)

L'essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) a été initialement développé chez Studsvik par Grigoriev et al [GRIG01], pour simuler la phase d'interaction mécanique pastille-gaine en situation accidentelle d'insertion de réactivité (ou RIA, *Reactivity Initiated Accident* en anglais). L'essai EDC consiste à comprimer axialement un pion cylindrique placé à l'intérieur de la gaine. La compression axiale du pion est accompagnée d'une expansion radiale qui entraîne un gonflement radial de la partie de la gaine en contact avec le pion (Figure 3-1). La gaine déformée au cours de l'essai EDC prend une forme de tonneau.

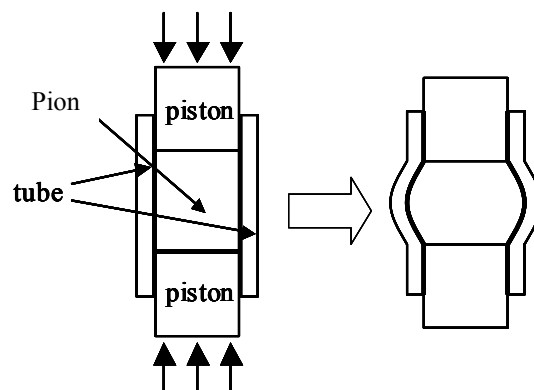


Figure 3-1 : Schéma de l'essai EDC.

Jusqu'à présent, l'essai EDC n'a jamais été utilisé pour tester les gaines oxydées à haute température. Or par rapport aux essais usuels utilisés (les essais de compression d'anneau, de flexion et d'impact), l'essai EDC présente des avantages pour tester les gaines oxydées qui ont trois couches de différentes phases dans l'épaisseur. En effet, l'essai EDC développe un chargement proche d'une traction circonférentielle dans la zone déformée de l'éprouvette (Figure 3-2). Le champ de contrainte dans les gaines oxydées

développé au cours de l'essai EDC est circonférentiellement quasi-homogène tandis que les essais usuels développent des champs de contrainte hétérogènes.

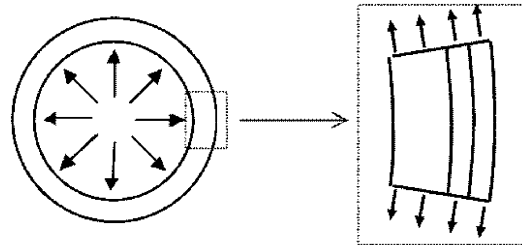


Figure 3-2 : Chargement dans la zone déformée d'une gaine à trois couches pendant l'essai EDC.

Il existe d'autres essais qui permettent d'appliquer une traction circonférentielle sur un matériau tubulaire, parmi lesquels on peut citer l'essai sous pression interne [DELO96, YASU87] et l'essai de traction sur anneau [ARSE97, BALO99, BATE00, DESQ11, SEOK06, BAE08, LESA08, YVON01]. La mise en pression interne pour un essai sous pression nécessite une bonne étanchéité, qui est difficile à obtenir pour les gaines oxydées à haute température à cause de la perte de ductilité et de la présence des couches fragiles. Pour un essai de traction sur anneau, l'usinage de l'éprouvette des gaines oxydées à haute température est difficile et risque d'endommager les gaines. Par ailleurs, l'essai sous pression interne et l'essai de traction sur anneau sont difficiles à interpréter au-delà de la localisation de la déformation.

L'essai EDC est choisi dans ce travail afin de caractériser le comportement mécanique des gaines oxydées à haute température. Une partie du travail de cette thèse consiste au développement de l'essai EDC au sein d'EDF R&D. Le développement de l'essai EDC servira également à caractériser le comportement des gaines de combustible pour différentes problématiques industrielles.

## 3.2 Développement de l'essai EDC

### 3.2.1 Montage de l'essai EDC

#### Machine de traction

L'essai EDC est développé au laboratoire LMTG (Laboratoire de Mécanique des Tubes de Gainage) d'EDF R&D en utilisant une machine hydraulique de marque Mayes. La ligne d'amarrage supérieure de la machine est fixe, le vérin est mobile et permet d'effectuer une traction ou une compression. Les lignes d'amarrage de la machine ont été raccourcies pour augmenter la rigidité de la configuration lors de l'application d'une compression. La position de la ligne d'amarrage inférieure a été modifiée de manière à aligner les deux lignes. La machine de traction est équipée d'une cellule de force de 25kN.

#### Pistons

L'application d'une compression est souvent effectuée à travers de plateaux de compression. La Figure 3-3 schématise la configuration de la réalisation d'un essai EDC avec des plateaux de compression. Geng [GENG05] a effectué des essais EDC en utilisant différents plateaux de compression. Il montre que les plateaux fixes permettent d'obtenir

une meilleure axisymétrie de l'essai par rapport aux plateaux rotulés. Cette conclusion est en accord avec l'étude de Le Saux [LESA07]. Cependant, en présence de plateaux fixes, l'alignement des pistons avant l'essai peut être problématique à cause des jeux entre la gaine et les pistons.

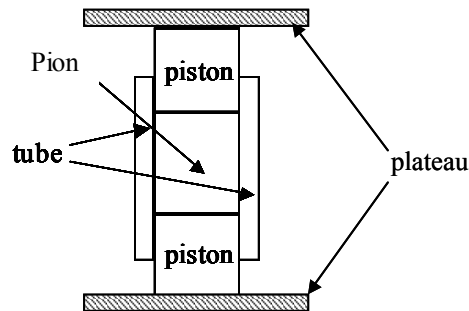


Figure 3-3 : Essai EDC effectué par plateaux de compression.

Dans l'étude de cette thèse, des pistons qui sont directement raccordés aux lignes d'amarrage de la machine (Figure 3-4) ont été conçus et usinés. Les pistons inférieur et supérieur sont identiques. Ils reposent par un contact plan/plan sur les lignes d'amarrage. Le raccordement des pistons aux lignes d'amarrage est réalisé par des écrous. Ces pistons gardent l'avantage des plateaux fixes et peuvent être alignés. L'alignement est effectué en ayant positionné les pistons et en vérifiant qu'un tube qui a un diamètre légèrement supérieur au diamètre des pistons peut coulisser sans gêne le long des pistons avant de serrer les écrous.

Le diamètre de la partie des pistons en contact avec le pion est de 8,30 mm. En effet, les gaines oxydées présentent une dispersion des diamètres internes selon les conditions d'oxydation et de refroidissement. La mesure donne des diamètres internes variant de 8,35 mm à 8,44 mm. Le choix du diamètre des pistons leur permet de coulisser dans les gaines oxydées avant l'essai EDC. Les pistons présentent une réduction de leur diamètre, 5 mm au-delà de la surface de contact. Cette réduction de diamètre vise à minimiser le frottement entre le tube et les pistons au cours de l'essai<sup>5</sup>. Les pistons sont usinés en Inconel X-750 (désignation AFNOR NC15FeTNbA).

<sup>5</sup> La partie de gaine qui n'est pas en contact avec le pion connaît une légère réduction de diamètre au cours de l'essai EDC, qui risque d'entraîner le contact et des frottements entre la gaine et les pistons.

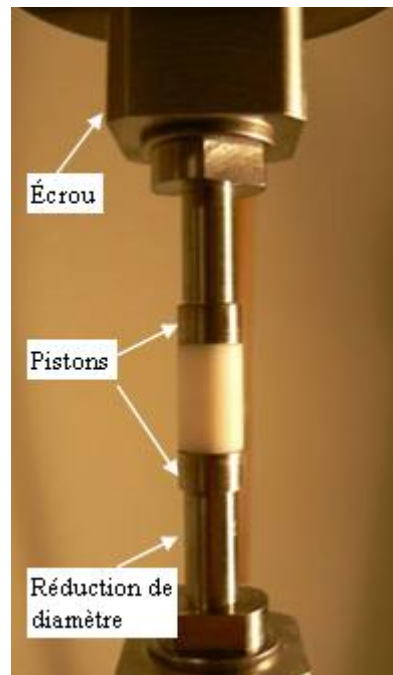


Figure 3-4 : Photo du montage de l'essai EDC et du pion en Téflon.

### Pion

Dans un essai EDC, l'éprouvette est chargée par l'intermédiaire du pion. Pour des essais EDC à température ambiante, le pion en Téflon est souvent utilisé [GENG05, LESA08, GRIG01] pour sa bonne déformabilité et son faible frottement. Pour l'essai EDC mené à des températures élevées, Le Saux [LESA07] a utilisé des pions métalliques.

Dans l'étude de la thèse, l'essai EDC est mené à température ambiante et les pions utilisés sont des pions cylindriques en Téflon (polytétrafluoroéthylène ou PTFE). Pour pouvoir introduire le pion dans l'éprouvette avant essai, le diamètre du pion doit être inférieur au diamètre interne de la gaine. Cela entraîne un jeu initial pion/gaine. Comme les diamètres internes des gaines oxydées présentent une variation entre 8,33 mm et 8,45 mm, des pions aux diamètres de 8,30 mm, 8,35 mm et 8,40 mm ont été usinés. Avant l'essai EDC le diamètre interne de l'éprouvette est mesuré et le pion qui s'adapte le mieux à l'éprouvette est utilisé afin de minimiser le jeu pion/gaine.

La longueur des pions choisie est de 12,5 mm. En effet, un pion trop court ne permet pas de charger suffisamment la gaine pendant l'essai EDC, et un pion trop haut entraîne le risque d'instabilité lors de la compression (flambage du pion). Notre choix de longueur du pion résulte d'un compromis et conduit à un rapport hauteur/diamètre de 1,5.

### 3.2.2 Déroulement de l'essai EDC

La longueur des éprouvettes de l'essai EDC est de 25 mm. Cette longueur est déterminée en prenant en compte la longueur des pions. En effet, seule la partie de la gaine en contact avec le pion est déformée pendant l'essai EDC. Une gaine trop longue entraîne un gaspillage du matériau. Par ailleurs, la gaine sert également de guidage pour les pistons



avant le commencement de l'essai, il faut donc que la gaine ne soit pas trop courte. Un rapport 2 entre la longueur des éprouvettes et la longueur du pion est un choix raisonnable.

Dans un essai EDC, la compression est effectuée par la montée de la ligne d'amarrage inférieure de la machine, et l'essai est piloté par le déplacement du vérin avec une vitesse de  $2,5 \times 10^{-3} \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Pendant l'essai EDC, le déplacement du vérin et la force de compression sont enregistrés. Pour mesurer la déformation de l'éprouvette, l'essai EDC est doté d'un système de stéréo-corrélation d'images qui sera présenté dans la section 3.3.

### 3.3 Mesure de déformation par stéréo-corrélation d'images

Dans un essai EDC l'éprouvette subit une expansion radiale qui est hétérogène dans le sens axial (forme de tonneau comme illustrée sur la Figure 3-1). La caractérisation du comportement de l'éprouvette par l'essai EDC nécessite la mesure du profil axial de déformation. Les techniques traditionnelles de mesure de déformation, telles que les extensomètres avec ou sans contact, permettent de mesurer la déformation circonférentielle sur une cote axiale de l'éprouvette de l'essai à partir de la mesure de la variation du diamètre. Les techniques de mesure de champ permettent de mesurer la déformation sur une zone de l'éprouvette, et seront plus adaptées pour l'essai EDC.

Dans le domaine de mesure de champ, les techniques optiques se sont rapidement développées étant donné leur caractère non intrusif, leur grande résolution spatiale et leur sensibilité élevée. La (stéréo) corrélation d'images numériques (Digital Image Correlation ou DIC en anglais) est une méthode optique qui permet de mesurer les déplacements en surface dans un espace 3D et d'en déduire les déformations. Dans l'étude de cette thèse, un système de mesure de déformation par stéréo-corrélation d'images est mis en place.

#### 3.3.1 Principe de la stéréo-corrélation d'images

La corrélation d'images bidimensionnelle utilise une seule caméra. Les images d'une surface mouchetée au cours d'un processus de déformation sont prises par la caméra à différents instants, et la corrélation d'image cherche la correspondance d'une zone locale sur les images aux différents instants (Figure 3-5).

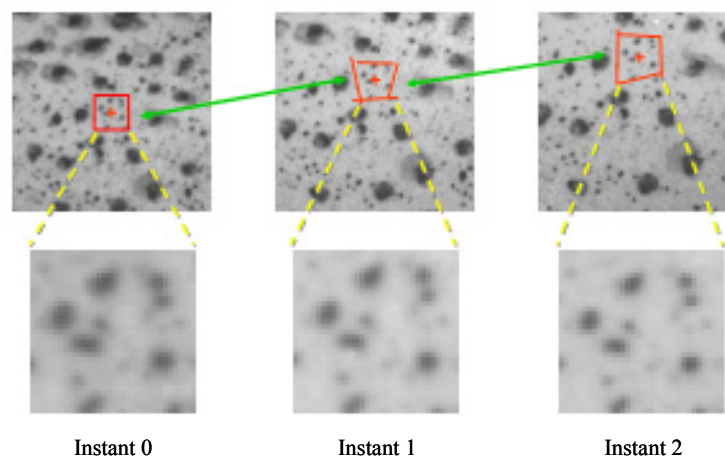


Figure 3-5 : Images d'une surface mouchetée aux différents instants [VIC].

La corrélation d'images consiste à placer un petit carré (appelé une imagerie) sur une image de référence (image 0 sur la Figure 3-6) et à chercher la zone correspondante de l'imagerie sur l'image prise à un instant différent (image 1 sur la Figure 3-6). Considérons un cas d'une translation. Soit  $(x,y)$  la position en pixel d'un point  $P$  sur l'image 0.  $P$  est le centre d'une imagerie de taille de  $2n+1$  en pixel. A un autre instant, le point  $P$  connaît une translation et sa nouvelle position est  $(x',y')$  sur l'image 1. La corrélation d'image évalue la similarité de la zone dont la taille est la même que l'imagerie et dont le centre est déplacé de  $u$  et  $v$  pixels par rapport à celui de l'imagerie sur l'image 1. La similarité est représentée par une fonction de corrélation :

$$C(u,v) = \sum_{i,j=-n}^n [I(x+i, y+j) - I^*(x+u+i, y+v+j)]^2,$$

où  $I(x,y)$  et  $I^*(x,y)$  sont les valeurs de pixel des images à l'instant 0 et à l'instant 1 respectivement. Les  $u$  et  $v$  qui minimisent la fonction  $C(u,v)$  sont les déplacements du point  $P$  entre l'image 0 et l'image 1 qui vérifient :

$$\begin{aligned} x' &= x + u \\ y' &= y + v \end{aligned}$$

Souvent la zone couverte par l'imagerie sur l'image 0 connaît une déformation et une rotation en plus d'une translation sur l'image 1. La déformation et la rotation peuvent être prises en compte en intégrant les dérivées dans la fonction de corrélation :

$$C = f(u, v, du/dx, du/dy, dv/dx, dv/dy).$$

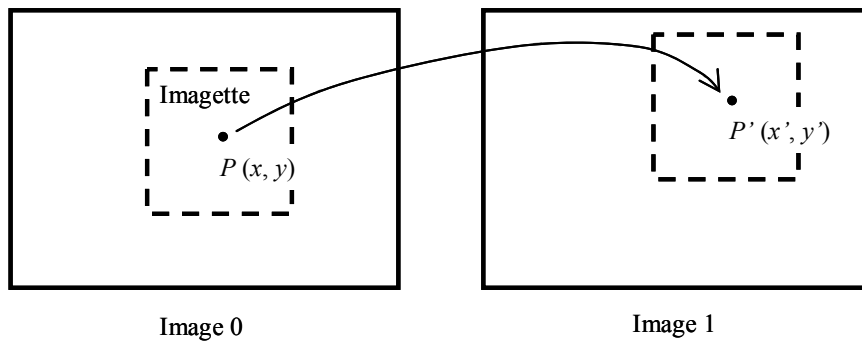


Figure 3-6 : Déplacement d'un point sur la surface entre deux images.

En balayant l'imagerie sur toute une zone d'intérêt de l'image 0, le champ de déplacement entre l'image 0 et l'image 1 peut être obtenu. A partir du champ de déplacement entre deux images (en pixel), le champ de déplacement dans l'espace réel (en unité de longueur) entre deux instants peut être calculé, moyennant la connaissance des paramètres de prise de vue (distance focale, distance entre la caméra et le point, etc...).

La corrélation d'images bidimensionnelle ne permet de mesurer que des déplacements plans et nécessite que le plan de déplacement et le plan d'image de la caméra soient parallèles et le restent pendant l'essai. La stéréo-corrélation d'images

permet de répondre à ces problèmes. En effet l'utilisation de deux caméras permet d'accéder à une information tridimensionnelle. L'information de profondeur étant obtenue par triangulation à partir de deux images ayant une partie commune dans leur champ de vue. Par exemple sur la Figure 3-7 les deux points  $Q$  et  $R$  qui sont confondus pour la caméra  $C$  sont distingués par la caméra  $C'$ . En corrélant les images prises par les deux caméras à un même instant, la forme de la surface peut être calculée. Le champ de déplacement tridimensionnel peut être obtenu en calculant la différence de la position de la surface à deux instants. Le champ de déformations peut être obtenu en effectuant la dérivation discrète du champ de déplacement.

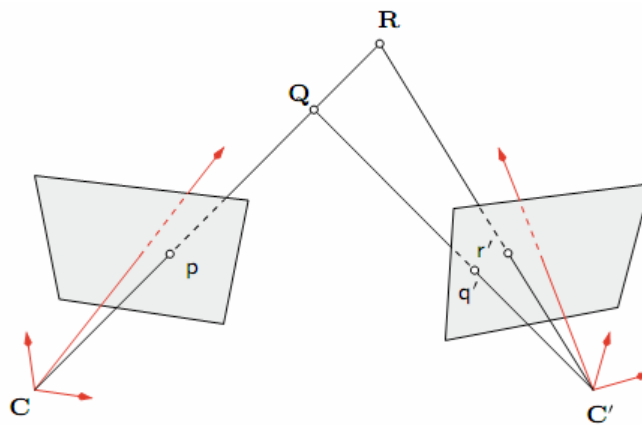


Figure 3-7 : Schéma de la stéréovision par deux caméras [SUTT09].

La stéréo-corrélation d'images nécessite une calibration qui fournit les paramètres tels que les distances focales des deux caméras, l'orientation et la distance des deux caméras.

La stéréo-corrélation d'images présente ainsi de nombreux avantages :

- la mesure de champs de déplacements/déformations 3D,
- la facilité de préparation de la surface de l'objet,
- la densité de l'information obtenue (chacun des pixels du capteur CCD de la caméra peut, en théorie, être apparié par corrélation ce qui fournit un champ de déplacements dense),
- le choix du pas de la grille virtuelle utilisée pour calculer les déformations à partir des déplacements s'effectue au moment du post-traitement des données et peut donc être adapté aux gradients de déformations en présence.

Les deux caméras constituant le système de stéréo-corrélation d'images peuvent être facilement adaptées à différentes surfaces de mesure d'environ 10 mm<sup>2</sup> à plus de 100 m<sup>2</sup>. La résolution locale de mesure de déplacement est typiquement de 0,01 pixel, ce qui correspond approximativement à 1  $\mu$ m sur une aire de 100 mm de côté. La résolution locale de mesure de déformation est approximativement de 0,01 %.

### 3.3.2 Montage des caméras

Un système de deux caméras qui prendra des images pour la mesure de déformation de l'essai EDC par stéréo-corrélation d'images est mis en place. Les caméras utilisées disposent d'un capteur CCD de 4,2 millions de pixels (2048x2048). La Figure 3-8 illustre le montage du système de caméras. La barre de couplage stéréoscopique entre les deux caméras est parallèle à l'axe de l'éprouvette dénoté par  $z$ . Ce montage permet d'avoir une plus grande zone utile de stéréo-corrélation par rapport au montage dans lequel la barre de couplage des caméras est perpendiculaire à  $z$ . En effet, dans ce dernier montage (illustré par la Figure 3-9a), la ligne génératrice de l'éprouvette la plus proche des caméras  $AA'$  se situe à l'extrémité droite dans l'image prise par la caméra 1, et à l'extrémité gauche dans celle prise par la caméra 2 (Figure 3-9b). Les contraintes de distance caméras/échantillon liées à l'optique disponible conduisent alors à une zone de recouvrement des images autour de  $AA'$  de petite taille.

Les deux caméras sont connectées à un ordinateur par un port FireWire. Les prises de vue et l'acquisition des signaux de la machine (le déplacement du vérin et la force de compression) sont synchronisées par le logiciel VicSnap<sup>®</sup>. Avant l'essai, le système des deux caméras est calibré par VicSnap<sup>®</sup> en utilisant une mire d'étalonnage.

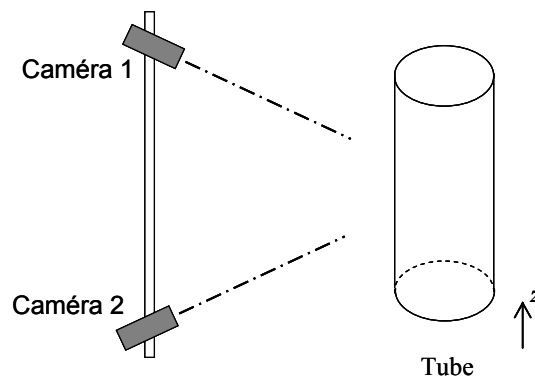


Figure 3-8 : Montage des caméras dans l'essai EDC.

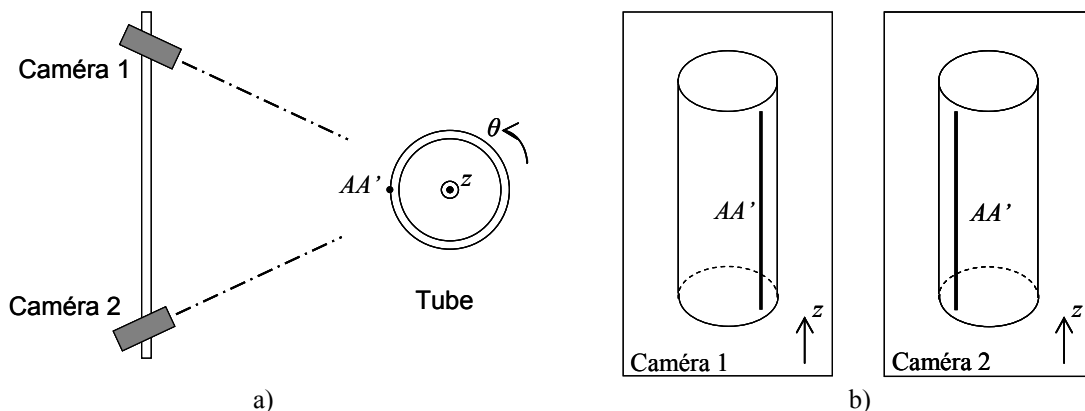
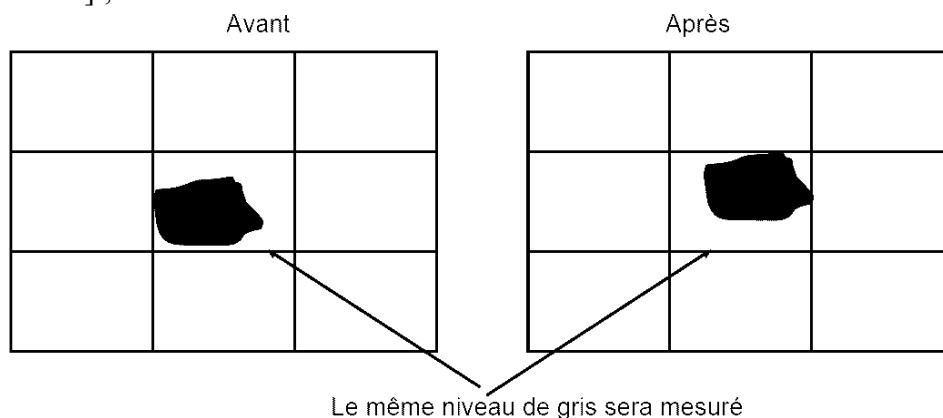


Figure 3-9 : Montage dans lequel la barre de couplage des caméras est perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette, a) schéma du montage, b) photos prises par les 2 caméras avec ce montage.

### 3.3.3 Application du mouchetis

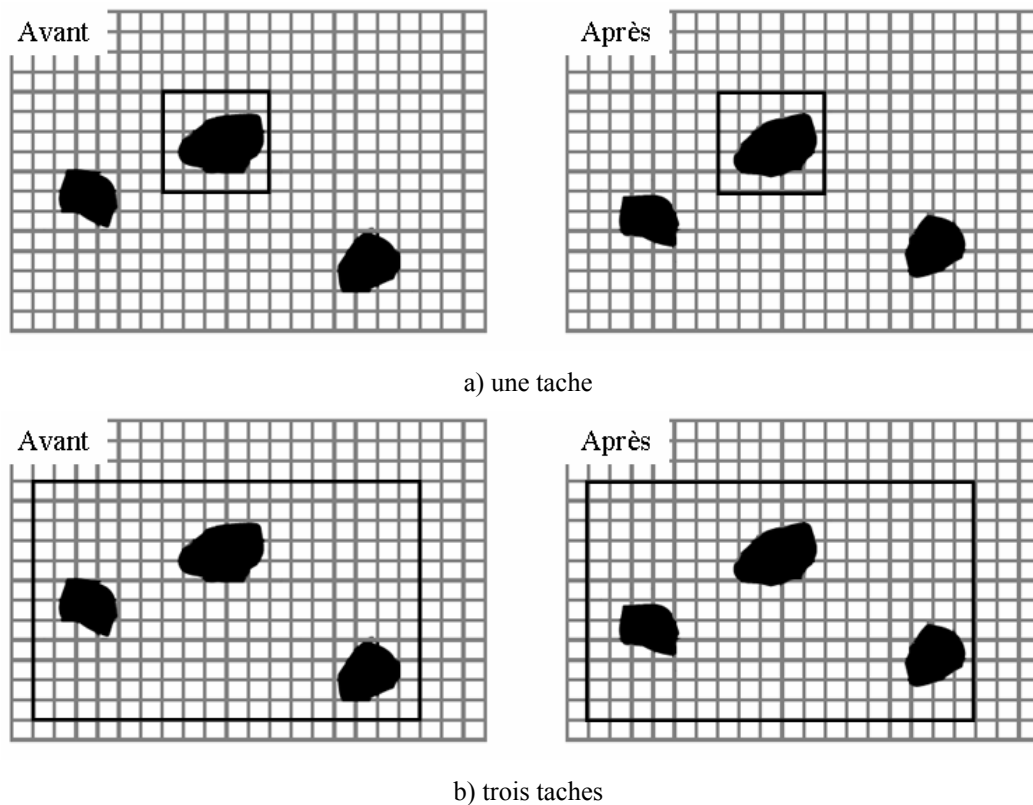
La corrélation d'image nécessite un mouchetis sur la surface extérieure de l'éprouvette. Certaines contraintes sont à respecter pour l'application de ce mouchetis :

- Le mouchetis doit être aléatoire pour que la correspondance soit unique ;
- Le mouchetis doit présenter un bon contraste ;
- Le mouchetis ne doit pas créer de reflet ;
- Le mouchetis doit être adhérent à l'éprouvette tout au long de l'essai et doit donc pouvoir subir de grandes déformations pour une éprouvette qui subira une grande déformation ;
- Les taches du mouchetis doivent occuper une zone d'une certaine taille en pixel sur l'image. En effet, si une tache occupe une zone trop petite en pixel, la variation de niveau de gris entre deux images introduite par le déplacement de la tache sera difficile à mesurer. La Figure 3-10 montre un exemple d'une tache dont la taille est plus petite qu'un pixel, le même niveau de gris sera mesuré entre deux images. Dans la pratique, la taille des taches doit être supérieure à 3x3 pixels dans l'image [SUTT09] ;



**Figure 3-10 : Tache de mouchetis qui occupe une zone trop petite en pixel lors de la corrélation d'images.**

- Lors de la corrélation d'images, une imagerie doit comporter un nombre suffisant de taches. La Figure 3-11 montre l'influence du nombre de taches comportées par l'imagerie sur la sensibilité de mesure de déplacement. La différence vue par l'imagerie entre les images « avant » et « après », qui est le déplacement mesuré, est plus sensible dans le cas de trois taches que dans le cas d'une tache. Dans la pratique, une imagerie doit comporter au minimum 3 taches [SUTT09].



**Figure 3-11 : Influence du nombre des taches que comporte une imagerie sur la mesure de déplacement.**

Dans cette étude, l'application du mouchetis sur les gaines oxydées est réalisée en deux étapes. Un fond blanc est d'abord créé par projection de peinture avec un aérogaphe. Ensuite des taches noires sont projetées avec une bombe aérosol. Cette façon de procéder se base sur les considérations suivantes :

- Les taches noires sur un fond blanc présentent un bon contraste ;
- L'aérogaphe permet de minimiser l'épaisseur du fond blanc pour ne pas avoir de craquelage de la peinture après un séchage trop long ;
- Les taches noires ne sont pas appliquées à l'aérogaphe car elles seraient trop fines. La plupart des taches noires réalisées par la bombe occupent  $5 \times 5$  pixels sur l'image.

La Figure 3-12 illustre le mouchetis réalisé. Le mouchetis est appliqué juste avant l'essai pour qu'il ne perde pas sa ductilité par séchage.

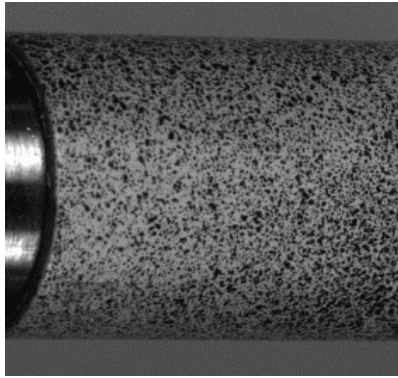


Figure 3-12 : Mouchetis sur la surface de la gaine.

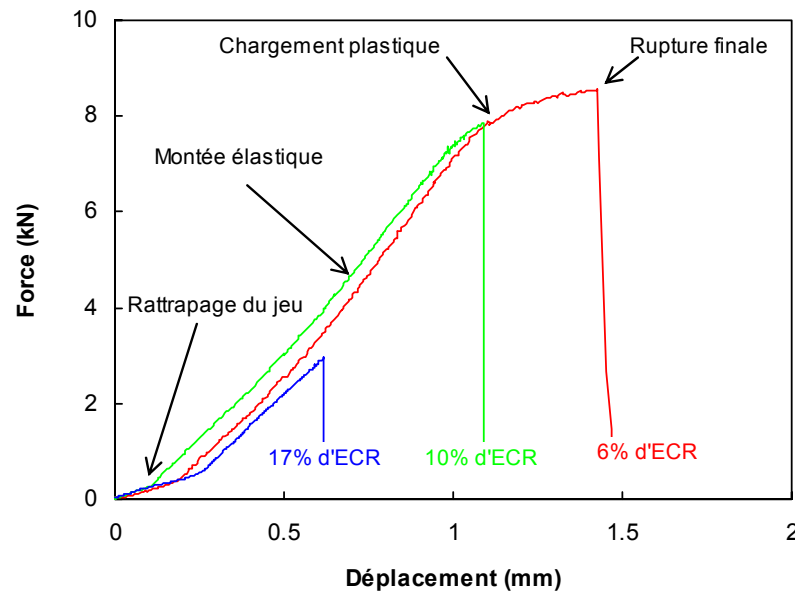
### 3.4 Post-traitement de l'essai EDC : Courbe force-déplacement

#### 3.4.1 Courbe force-déplacement

Le comportement de la gaine est tout d'abord caractérisé par la relation entre le déplacement du vérin et la force de compression enregistrés pendant l'essai EDC, ce qui constitue la courbe force-déplacement.

La Figure 3-13 illustre les courbes force-déplacement de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1200°C puis trempées avec des ECR visés de 6%, 10% et 17%. Les courbes force-déplacement commencent par une étape de rattrapage du jeu pion/gaine où le pion et la gaine ne sont pas en contact. Cette étape correspond à une compression axiale du pion. La longueur de l'étape de rattrapage de jeu est déterminée par le jeu initial pion/gaine. Plus le jeu est important, plus l'étape de rattrapage de jeu est longue. Dès que le contact entre le pion et la paroi interne de la gaine est établi, la gaine commence à être chargée, et la courbe présente un saut de pente. Au début du chargement, la gaine se comporte élastiquement, et la courbe est ainsi dans une étape de montée élastique. Avec l'augmentation de la charge, les courbes des gaines de 6% et de 10% d'ECR visé présentent une forme ressemblant à la plastification d'un essai de traction. L'étape qui correspond à la forme de plastification est appelée l'étape de « chargement plastique ». Les chutes de force brutales sur les courbes correspondent aux ruptures finales des gaines dans l'essai EDC.

Comme les gaines oxydées présentent une variation de diamètre interne et que des pions de différents diamètres sont utilisés dans l'essai EDC, les jeux initiaux pion/gaine sont différents pour différents essais. Les différents jeux pion/gaine entraînent des étapes de rattrapage de jeu de différentes largeurs sur les courbes force-déplacement, qui rendent une comparaison directe à partir des courbes force-déplacement difficile. Il est souhaitable d'éliminer l'étape de rattrapage de jeu des courbes force-déplacement pour permettre une comparaison directe de différents essais entre eux.



**Figure 3-13 : Courbes force-déplacement de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1200°C puis trempées, avec différents ECR visés.**

Sur les courbes force-déplacement, un changement de pente de la montée élastique est constaté, comme illustré sur les courbes force-déplacement des deux essais EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempées avec un ECR visé de 6% (Figure 3-14). Les deux essais ont été effectués en utilisant deux jeux de pistons différents. Il est visible que l'utilisation du jeu de piston 2 entraîne un changement de pente plus important que l'utilisation du jeu de piston 1. Ce phénomène est constaté sur tous les essais EDC effectués sur des gaines avec les mêmes conditions d'oxydation en utilisant les deux jeux de pistons. Comme les pistons sont raccordés à la machine à l'aide d'écrous, le raccordement peut présenter des jeux. Le changement de pente est donc considéré lié au rattrapage des jeux de raccordement des pistons.

Le déplacement enregistré est celui de la traverse de la machine, qui n'est pas le déplacement des pistons. Pour obtenir le déplacement des pistons, le déplacement dû à la rigidité du montage d'essai doit être éliminé. La rigidité du montage d'essai comporte deux parties : les jeux de raccordement des pistons et la rigidité de la machine.



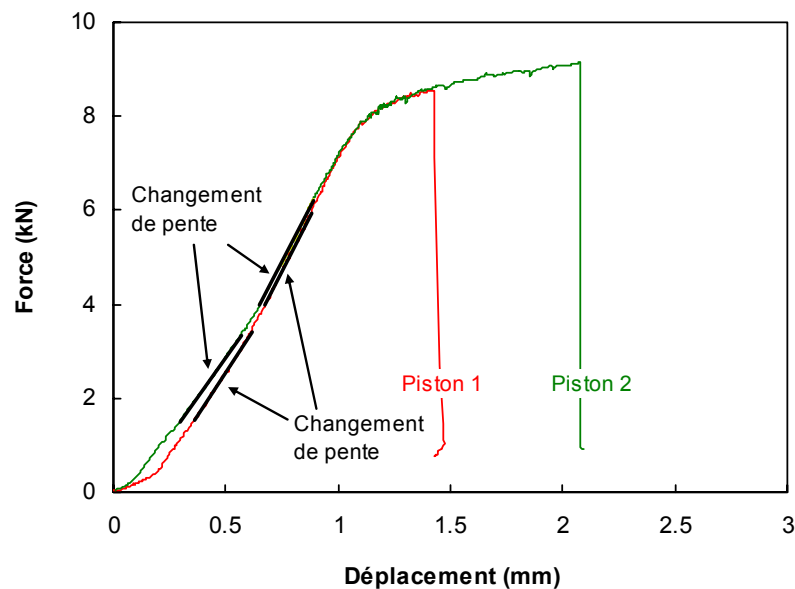


Figure 3-14 : Courbes force-déplacement des essais EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempées avec un ECR visé de 6%.

### 3.4.2 Correction de la courbe force-déplacement

Pour permettre une comparaison directe des courbes force-déplacement des essais EDC sur les gaines oxydées, les courbes force-déplacement sont corrigées de manière à éliminer l'étape de rattrapage de jeu initial pion/gaine et le déplacement dû à la rigidité du montage.

#### Elimination de l'étape de rattrapage de jeu initial pion/gaine

Une méthode de correction des courbes force-déplacement pour éliminer l'étape de rattrapage de jeu initial pion/gaine est proposée et schématisée sur la Figure 3-15. La méthode consiste à appliquer un offset horizontal sur la courbe force-déplacement pour que la courbe commence par une force  $F_0$ , qui correspond à la force à partir de laquelle le contact pion/gaine est complètement établi dans tous les essais EDC effectués. Dans cette étude, le choix de 1,5 kN pour  $F_0$  convient.

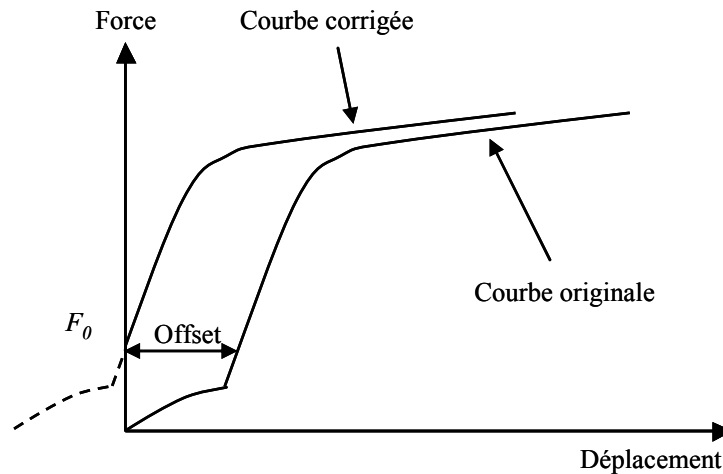


Figure 3-15 : Schéma de la méthode de correction de la courbe force-déplacement de l'essai EDC.

La méthode de correction pour éliminer l'étape de rattrapage de jeu est justifiée à l'aide de la simulation de l'essai EDC sur des gaines homogènes par la méthode des éléments finis. Deux matériaux de gaine sont utilisés dans la simulation. Les deux matériaux sont élasto-plastiques et leurs comportements en écrouissage sont modélisés par l'équation suivante :

$$R(p) = \sigma_y \left( 1 + \frac{p}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{n}}$$

où  $\varepsilon_0 = \sigma_y / E$  et  $p$  est la déformation plastique cumulée.

Les paramètres de comportement des deux matériaux sont présentés dans le Tableau 3-1. Le matériau 1 correspond à la modélisation de la gaine en Zircaloy-4 vierge à température ambiante proposée par [DUFO02, MENA03]. Le matériau 2 a un module d'Young  $E$  10% supérieur et une contrainte d'écoulement  $R(p)$  10% supérieure par rapport au matériau 1. Les relations  $\sigma$ - $\varepsilon$  des deux matériaux sont illustrées sur la Figure 3-16.

Tableau 3-1 : Paramètres de comportement des gaines.

	$E$ (GPa)	$\nu$	$\sigma_y$ (MPa)	$n$
Matériau 1	97	0,4	600	7,76
Matériau 2	106,7	0,4	660	7,76

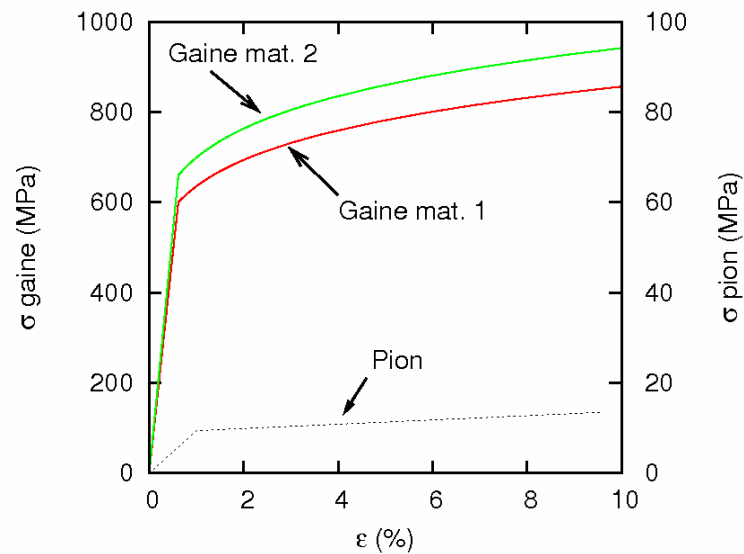


Figure 3-16 : Comportements des matériaux de gaine et du pion.

Les gaines dans la simulation ont des dimensions identiques : diamètre interne  $d_{\text{int}}$  de 8,4 mm, épaisseur de 0,58 mm, longueur de 25 mm. Des pions avec différents diamètres  $d_{\text{pion}}$  sont utilisés pour générer différents jeux pion/gaine. Les jeux sont donnés par  $(d_{\text{int}} - d_{\text{pion}}) / 2$ .

La modélisation du comportement mécanique du pion est élasto-plastique avec un écrouissage linéaire. Les paramètres de modélisation sont : le module d'Young  $E=593$  MPa, le coefficient de Poisson  $\nu=0,47$ , la limite d'élasticité  $\sigma_y=9,37$  MPa, et le module d'écrouissage  $H=50,95$  MPa. La courbe  $\sigma$ - $\epsilon$  du comportement du pion est illustrée sur la Figure 3-16.

Les détails de simulation sont donnés dans le chapitre 5. La Figure 3-17 montre les courbes force-déplacement de la simulation de l'essai EDC sur les gaines avec différents jeux pion/gaine. Il est évident que l'existence des étapes de rattrapage de jeu rend difficile la distinction des deux comportements de gaine à partir des courbes force-déplacement. La Figure 3-18 montre les courbes force-déplacement corrigées avec la méthode proposée. La courbe force-déplacement corrigée permet de représenter qualitativement le comportement mécanique de la gaine testée par l'essai EDC.

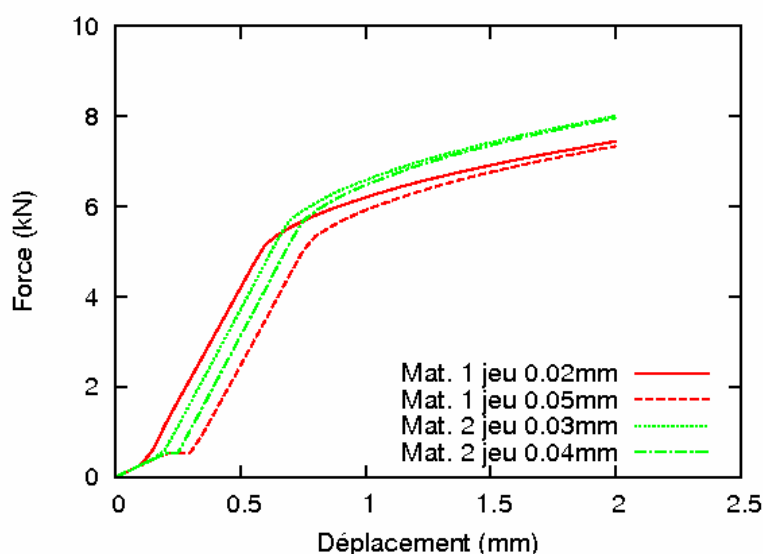


Figure 3-17 : Courbes force-déplacement originales des simulations de l'essai EDC.

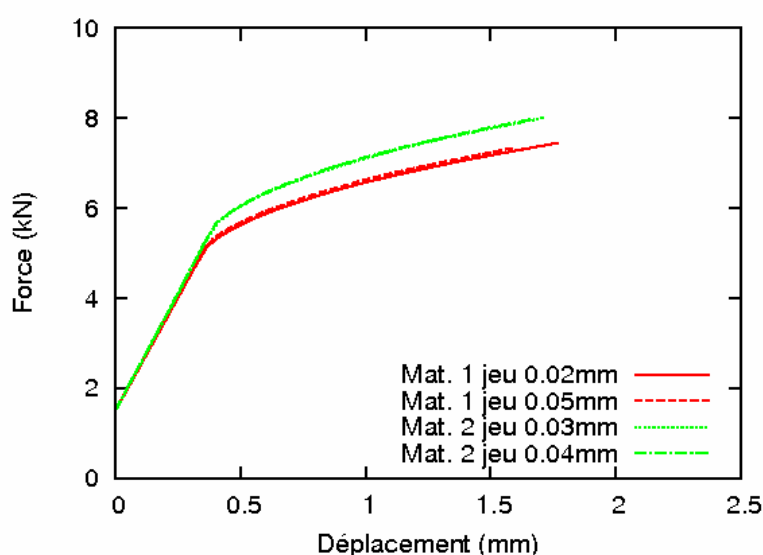


Figure 3-18 : Courbes force-déplacement corrigées des simulations de l'essai EDC.

En effet, dans un essai EDC sur la gaine, le pion en Téflon entre dans le régime plastique très tôt avec un faible niveau de force. Pour un jeu initial pion/gaine inférieur à 0,05 mm, à une force de 1,5 kN, le contact pion/gaine est complètement établi, et le pion est dans le régime plastique. A partir de la force de 1,5 kN, la pente de l'étape de montée élastique de la courbe force-déplacement est déterminée par le module d'écrouissage du pion et le module d'Young de la gaine, et ne dépend pas du jeu pion/gaine. Au moment du début de l'étape de chargement plastique de la courbe force-déplacement (la gaine commence à plastifier), le pion a déjà une déformation plastique importante. Différents jeux pion/gaine entraînent différents niveaux de déformation plastique dans le pion au moment du début de l'étape de chargement plastique. Cependant comme le module d'écrouissage du pion est faible (Figure 3-16), différents jeux pion/gaine donnent des niveaux de force très proches pour un même comportement de gaine. L'indépendance de

la pente de l'étape de montée élastique et du niveau de force de chargement plastique au jeu pion/gaine explique la validité de la méthode de correction pour éliminer l'étape du rattrapage de jeu pion/gaine proposée.

### Elimination de la rigidité du montage

La rigidité du montage d'essai comporte deux parties : les jeux de raccordement des pistons et la rigidité de la machine. La rigidité de la machine est mesurée en mettant directement en compression les deux pistons. L'application de la compression est pilotée par la force de compression. La Figure 3-19 montre la courbe force-déplacement de la compression. Les jeux du montage sont très vite rattrapés au tout début de la compression, et la rigidité de la machine mesurée est de 81,3 kN/mm.

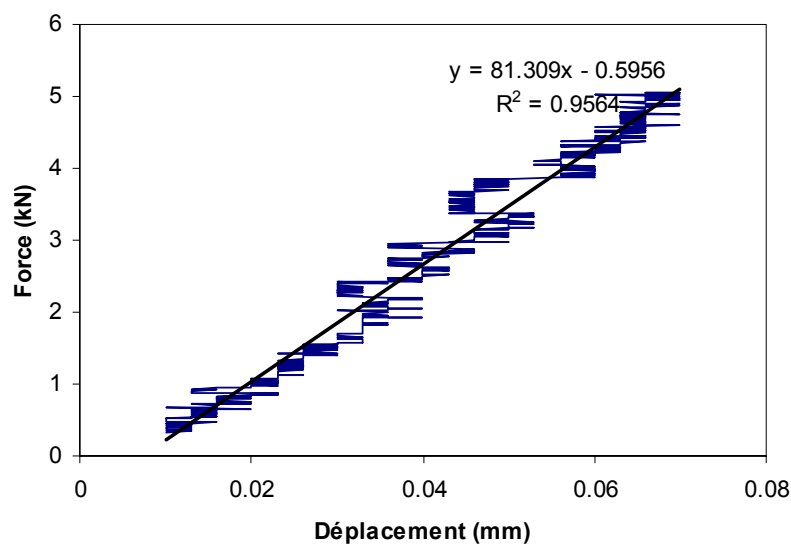


Figure 3-19 : Rigidité de la machine.

Les jeux de raccordement des pistons sont déterminés à partir du changement de pente de la montée élastique des courbes force-déplacement de la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6% (Figure 3-14). En effet, la montée élastique de cette gaine atteint un niveau de force le plus élevé parmi toutes les gaines testées. On note qu'à un niveau de force de 4 kN, le changement de pente s'achève pour les deux pistons. L'achèvement du changement de pente est considéré lié à l'achèvement du rattrapage des jeux de raccordement des pistons. Pour une force inférieure à 4 kN, le prolongement de la pente de la montée élastique au-delà de 4 kN donne les jeux du montage à rattraper  $d$  (Figure 3-20). Les jeux à rattraper sont tracés en fonction de la différence entre la force et une force de 4 kN, car à 4 kN les jeux sont complètement rattrapés. La Figure 3-21 montre la relation entre les jeux à rattraper et la force pour le jeu de piston 2 et une régression sous la forme de :

$$d = a(4 - F)^b$$

Les paramètres  $a$  et  $b$  n'ont pas de sens physique, ils sont purement numériques pour  $d$  en mm et  $F$  en kN.

Le même procédé est effectué pour déterminer les jeux de raccordement du jeu de piston 1. Les paramètres des régressions pour les deux pistons sont récapitulés dans le Tableau 3-2.

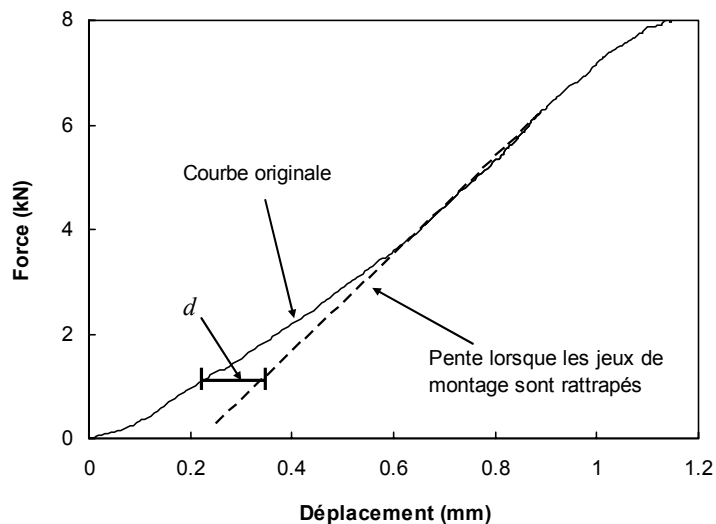


Figure 3-20 : Jeux de raccordement du jeu de piston 2 à rattraper  $d$  pour une force inférieure à 4 kN.

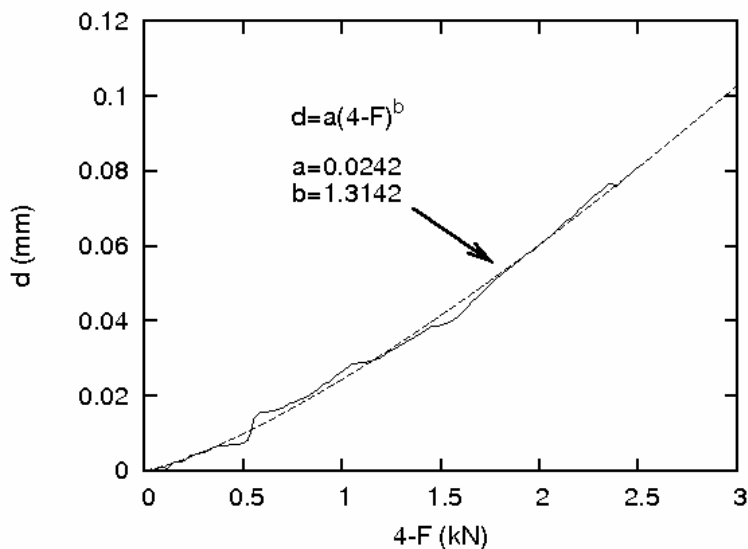


Figure 3-21 : Relation entre les jeux à rattraper et la force de compression de l'essai sur l'éprouvette 6\_1200\_T\_F.

Tableau 3-2 : Paramètres des régressions des jeux du montage pour les tronçons E et F.

	a	b
Jeu de piston 1	0,0121	1,7373
Jeu de piston 2	0,0242	1,3142

### Procédure de correction des courbes force-déplacement

La correction des courbes force-déplacement de l'essai EDC est effectuée en trois étapes. Tout d'abord le déplacement dû à la rigidité de la machine est déduit du déplacement du vérin. Ensuite les jeux de raccordement du jeu de piston utilisé pour une force inférieure à 4 kN en sont déduits. Enfin, les courbes sont déplacées horizontalement pour que les courbes force-déplacement passe un déplacement zéro à une force de 1,5 kN. La Figure 3-22 montre la courbe force-déplacement corrigée de la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6% pour un essai EDC effectué avec le jeu de piston 2.

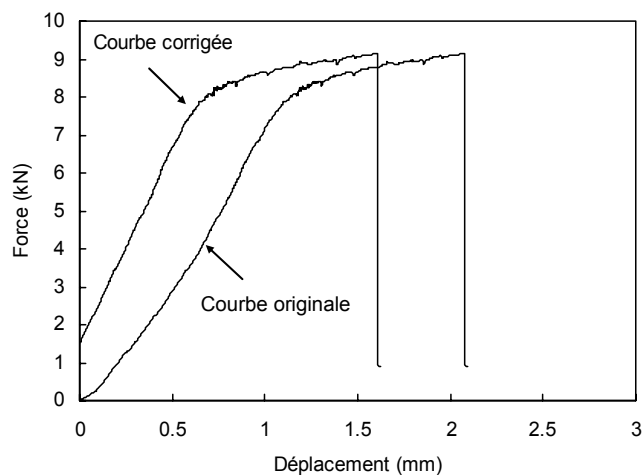


Figure 3-22 : Courbes force-déplacement originale et corrigée de la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6% pour un essai EDC effectué avec le jeu de piston 2.

Les courbes force-déplacement corrigées montrent une bonne reproductibilité de l'essai EDC sur des gaines dans les mêmes conditions d'oxydation (Figure 3-23).

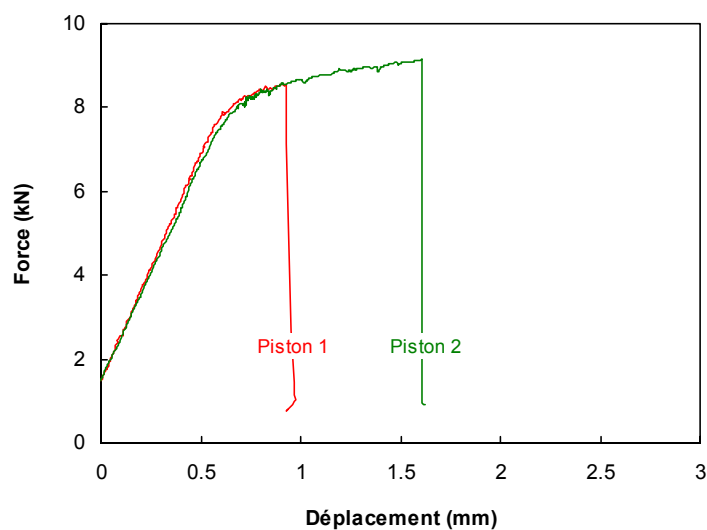


Figure 3-23 : Courbes force-déplacement corrigées des deux essais EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6%.

### 3.5 Post-traitement de l'essai EDC : déformation de la gaine

A partir des images prises par le montage de caméras décrit dans la section 3.3, la déformation de la surface externe des gaines oxydées au cours de l'essai EDC est calculée par stéréo-corrélation d'images en utilisant le logiciel Vic-3D®.

La desquamation partielle des gaines trempées avec un ECR visé de 17% rend la corrélation d'images difficile. En effet, la zone desquamée présente une rugosité or la corrélation d'images nécessite une surface lisse. La zone non desquamée (c'est-à-dire la zircone restante) se détache très facilement de la gaine. La déformation de la zone non desquamée représente donc mal la déformation de la gaine. Pour les gaines desquamées avant l'essai EDC, la corrélation d'images n'est pas effectuée.

Dans cette section la démarche de calcul de déformation sera présentée.

#### 3.5.1 Calcul de la position

La corrélation d'images calcule tout d'abord la position d'une zone d'intérêt définie sur la surface extérieure de gaine à un instant donné. Une imagerie de  $21 \times 21$  pixels est utilisée. Ce choix garantit la bonne précision étant donné que la taille des taches dans le mouchetis est de  $5 \times 5$  pixels (section 3.3.3). Le logiciel choisit automatiquement un système de coordonnées cartésiennes et calcule la position en  $(x, y, z)$  des points de la zone d'intérêt. La Figure 3-24 montre la position en  $z$  calculée d'une zone d'intérêt sur la surface extérieure d'une gaine vierge. La position en  $(x, y, z)$  permet de reconstruire la surface dans l'espace 3D (Figure 3-25).

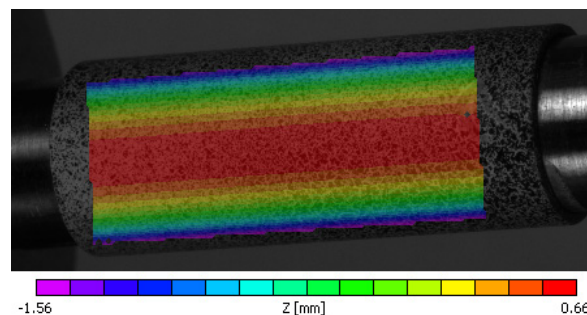


Figure 3-24 : Position en  $z$  de la surface extérieure d'une gaine vierge calculée par stéréo-corrélation d'images.

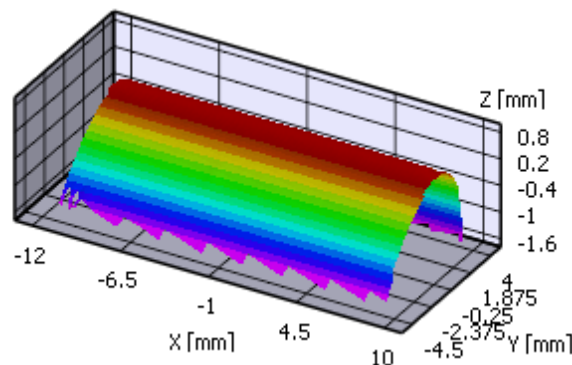


Figure 3-25 : Reconstruction de la surface extérieure dans l'espace 3D.



### 3.5.2 Transformation des coordonnées

Etant donnée la forme tubulaire des gaines, une représentation de la forme ou de la déformation dans un système de coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$  est préférable. Or la position calculée par le logiciel Vic-3D<sup>®</sup> est présentée dans un système de coordonnées cartésiennes  $(O, x_0, y_0, z_0)$ , choisi par défaut par le logiciel. Pour faciliter la représentation de la forme ou la déformation en coordonnées cylindriques, les coordonnées  $(O, x_0, y_0, z_0)$  sont transformées en  $(O, x, y, z)$  de manière à ce que l'axe  $x$  soit parallèle à l'axe du tube et que l'axe  $y$  soit contenu dans le plan tangent du tube qui contient la ligne génératrice la plus proche des caméras (Figure 3-26). Par conséquent, sur la ligne génératrice la plus proche des caméras, les directions correspondantes en coordonnées cartésiennes  $(x, y, z)$  et en coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$  sont les suivantes :

coordonnées cartésiennes	coordonnées cylindriques
$x$	$z$
$y$	$\theta$
$z$	$r$

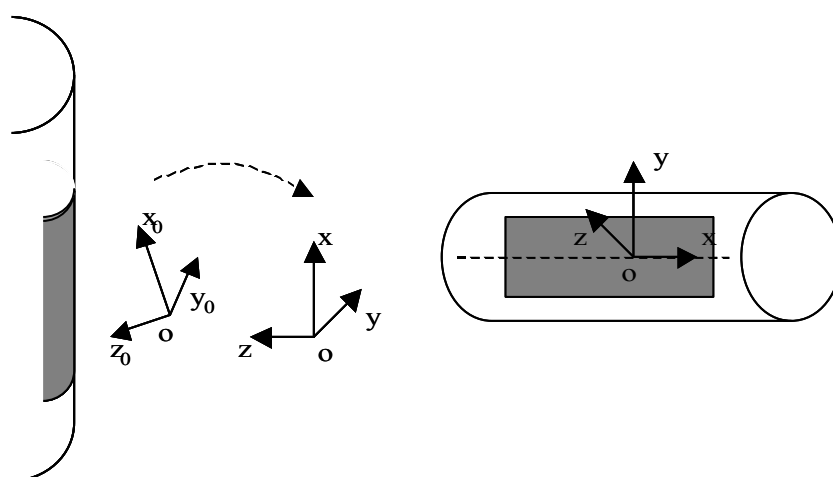
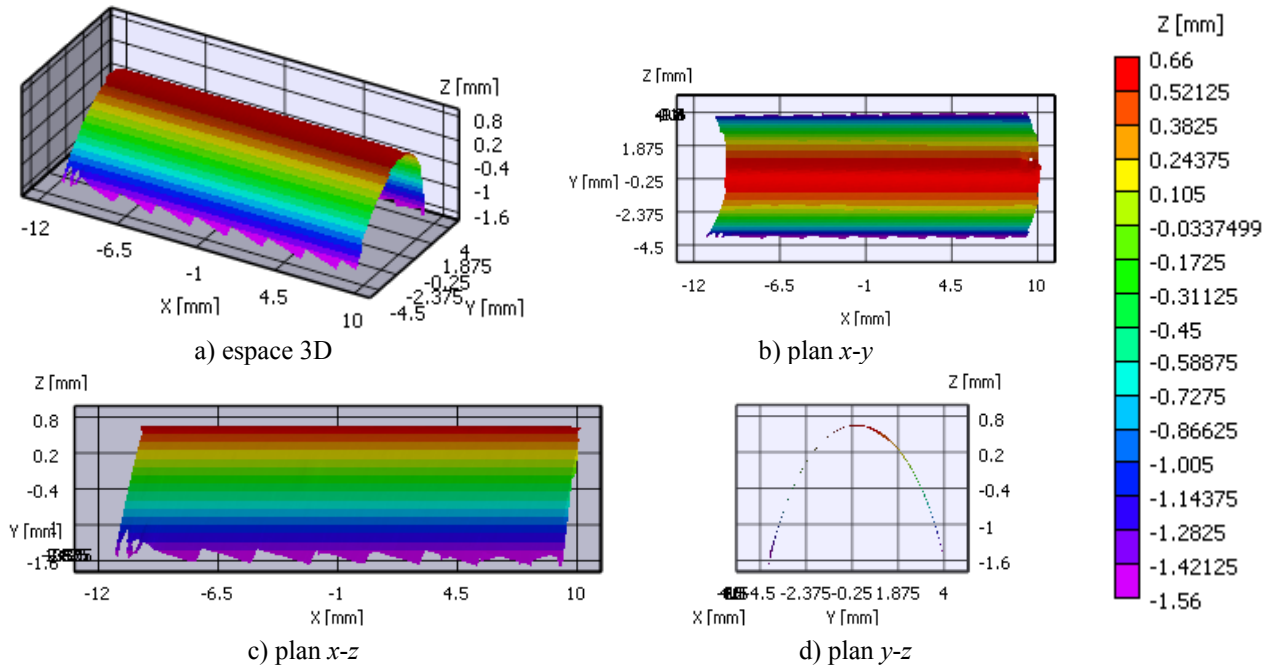
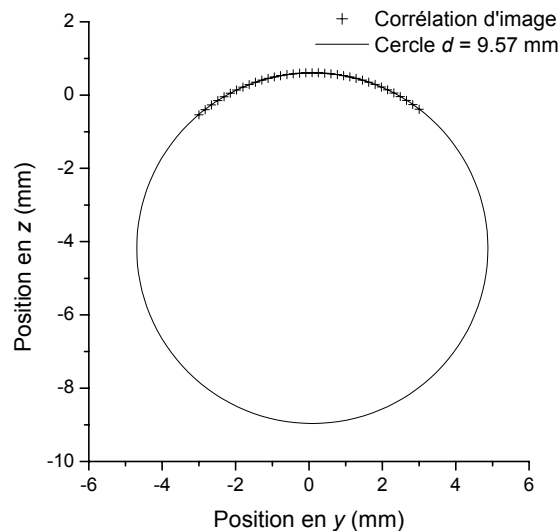


Figure 3-26 : Schéma de la transformation des coordonnées.

La Figure 3-27 montre la surface extérieure d'une gaine vierge reconstruite après la transformation des coordonnées. En traçant la position en  $y$  et  $z$  des points à une position en  $x$  quelconque, on obtient un arc de la surface extérieure de la gaine à une cote axiale (Figure 3-28). Cet arc coïncide avec un cercle de diamètre de 9,57 mm, qui est le diamètre extérieur de la gaine vierge, avec un écart inférieur à 0,01 mm. Cet écart peut être lié à l'épaisseur non homogène de la peinture couplée à l'erreur de mesure.



**Figure 3-27 : Surface extérieure d'une gaine vierge reconstruite par la stéréo-corrélation d'images après la transformation des coordonnées.**



**Figure 3-28 : Forme d'une gaine vierge (coordonnées cartésiennes).**

Un essai EDC est effectué sur la gaine dont la forme est présentée sur la Figure 3-27 et la Figure 3-28. La gaine a subi un chargement de 4 mm en déplacement de compression et puis une décharge à force de compression nulle. La gaine déchargée montre une forme de tonneau (Figure 3-29a). La forme de la gaine déformée est reconstruite par la stéréo-corrélation d'images (Figure 3-29b) avec le même système de coordonnées que la forme non déformée. La différence entre la position de la forme déformée et celle de la forme non déformée est le déplacement de la surface. Le déplacement  $w$  (déplacement suivant la direction  $z$  en coordonnées cartésiennes) de la ligne génératrice la plus proche des caméras (la ligne en  $z$  max. sur la Figure 3-27) permet de mesurer le profil axial de variation du

rayon par rapport à la forme non déformée. Ce profil du rayon est également mesuré à l'aide d'un extensomètre laser avec lequel deux mesures sont effectuées en tournant le tube de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ . La comparaison des mesures par stéréo-corrélation et par laser montre un bon accord entre ces deux techniques (Figure 3-30). Les positions des points sur la cote la plus déformée sont bien sur un cercle dont le diamètre est celui mesuré par l'extensomètre laser (Figure 3-31). On peut conclure que la mesure de la position par la stéréo-corrélation d'image est précise.

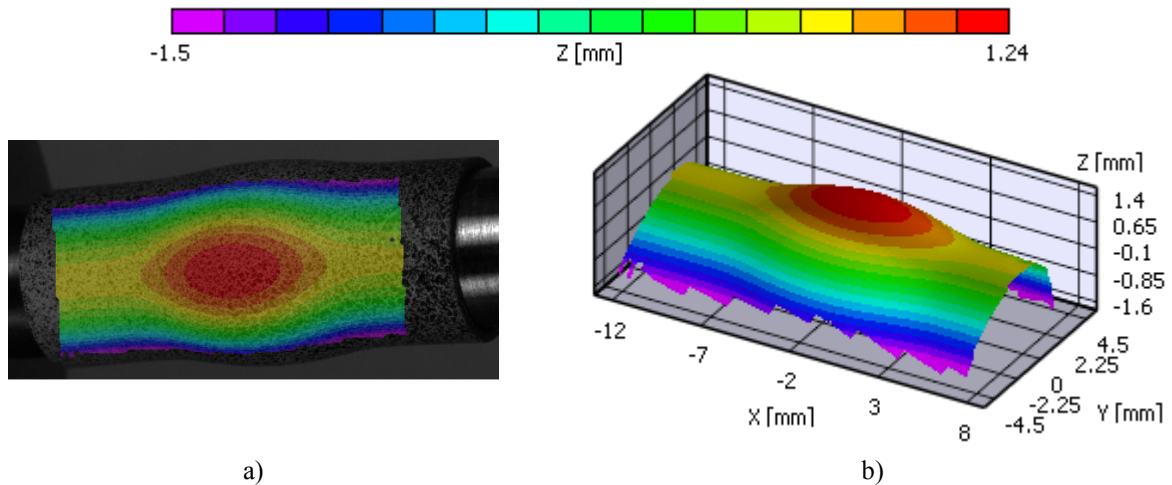


Figure 3-29 : Gaine vierge déformée par l'essai EDC, a) l'image de la gaine déformée, b) reconstruction de la forme par stéréo-corrélation d'images.

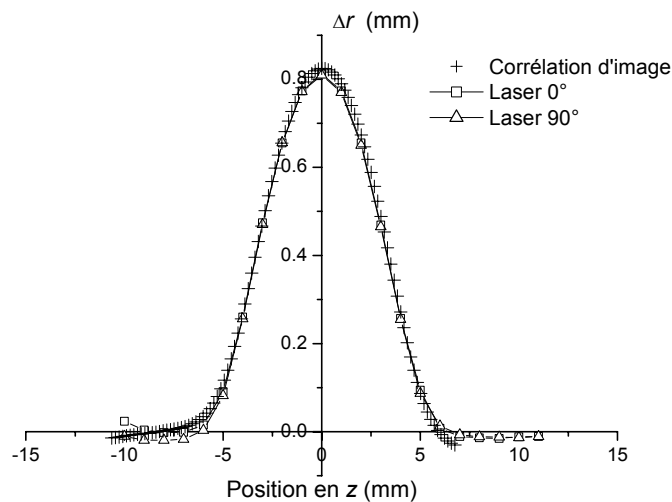


Figure 3-30 : Profil axial de la variation du rayon du tube déformé en coordonnées cylindriques.

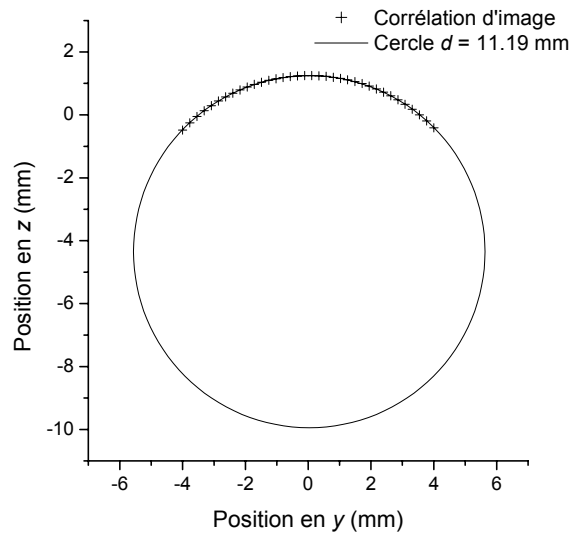


Figure 3-31 : Positions en coordonnées cartésiennes des points sur la cote la plus déformée du tube mesurées par stéréo-corrélation.

### 3.5.3 Calcul de champs de déformations

Le déplacement de la surface à différents instants par rapport à la surface initiale de la gaine permet de calculer le champ de déformations. Le champ de déformations de Green-Lagrange est calculé. Comme l'objet de la stéréo-corrélation d'images est une surface, seules les déformations dans le plan tangent lié à un point sur la surface peuvent être calculées. Le logiciel Vic-3D<sup>®</sup> calcule, dans le plan tangent, les 3 composantes de la déformation de Green-Lagrange  $e_{xx}$ ,  $e_{yy}$  et  $e_{zz}$  définies par :

$$e_{xx} = \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial x} \right)^2 \right]$$

$$e_{yy} = \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial u}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 \right]$$

$$e_{xy} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right)$$

où les positions, les déplacements et les déformations sont exprimés dans le repère local du plan tangent ( $T_x$ ,  $T_y$ ) dans la configuration de référence.

L'algorithme choisit  $T_x$  comme la projection de l'axe  $x$  dans le plan tangent, et  $T_y$  est ensuite calculé par le produit vectoriel de  $T_x$  et la normale  $N$ . Dans l'essai EDC, après la transformation des coordonnées, à un point quelconque  $P$  sur la surface dans la configuration de référence,  $T_x$  et  $T_y$  sont bien les directions axiale et circonférentielle respectivement (Figure 3-32). Les déformations  $e_{xx}$  et  $e_{yy}$  calculées sont donc directement  $e_{zz}$  et  $e_{\theta\theta}$  respectivement en coordonnées cylindriques.

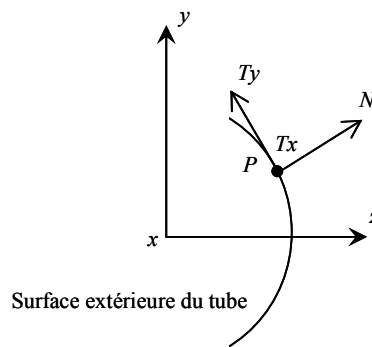


Figure 3-32 : Repère local du plan tangent du tube (coordonnées cartésiennes).

Numériquement les déformations calculées sont souvent lissées avec un filtre. La résolution spatiale et le bruit dépendent de la taille du filtre. L'augmentation de la taille de filtre réduit le bruit mais diminue la résolution spatiale. Dans le travail de cette thèse, un filtre gaussien de taille de 29 points de données est utilisé. Ce choix permet d'avoir un bon compromis entre l'élimination du bruit pour une déformation faible et l'obtention d'une résolution suffisante pour une déformation grande.

Il est à noter que dans les zones près des bords de la zone d'intérêt le bruit est plus important car il y a moins de points disponibles pour effectuer le calcul des déformations et le filtre y devient non symétrique.

### 3.5.4 Déformations circonférentielle de la gaine dans l'essai EDC

La Figure 3-33 montre le champ de déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  sur la surface extérieure d'une gaine pendant l'essai EDC. On constate que le champ de déformation n'est pas parfaitement axisymétrique. En effet, lors d'un essai EDC l'alignement des pistons et du pion et aussi le parallélisme des plans de compression ne sont pas toujours parfaits, ce qui peut entraîner la perte de l'axisymétrie. Ainsi, pour déterminer le profil axial de déformation circonférentielle, à chaque cote axiale, les déformations sur un secteur angulaire de tube de  $45^\circ$  sont moyennées (Figure 3-33). Ce traitement des données conduit au profil axial de déformation circonférentielle montré sur la Figure 3-34. L'origine de la cote axiale  $z$  du profil de déformation circonférentielle est placée au milieu de la zone déformée. On y voit que la zone déformée n'est pas parfaitement symétrique par rapport à son milieu, du fait que, pendant un essai EDC, seule la ligne d'amarrage inférieure monte alors que la ligne supérieure est fixe.

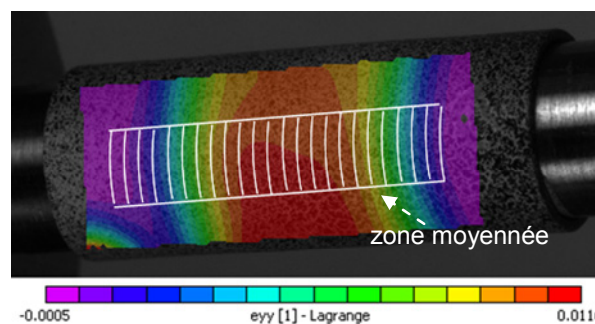


Figure 3-33 : Champ de déformation circonférentielle pendant l'essai EDC.

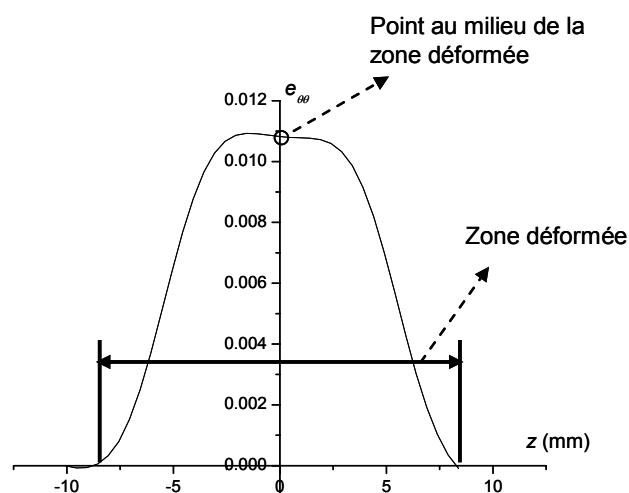


Figure 3-34 : Profil de déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  (coordonnées cylindriques).

La déformation circonférentielle au milieu de la zone déformée n'est pas forcément la déformation circonférentielle maximale, mais reste toujours très proche de la déformation circonférentielle maximale. La déformation circonférentielle au milieu de la zone déformée permet de décrire le niveau de déformation subi par la gaine dans l'essai EDC, et est donc utilisée, par simplicité, comme la déformation circonférentielle de la gaine.

La déformation circonférentielle de la gaine est corrélée avec la force de compression, qui donne la courbe force-déformation de l'essai EDC. La Figure 3-35 montre la courbe force-déformation des deux essais EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6%. La courbe force-déformation présente les mêmes étapes que la courbe force-déplacement : le rattrapage de jeu, la montée élastique et le chargement plastique. La fin d'une courbe force-déformation correspond à la rupture de la gaine dans l'essai EDC.

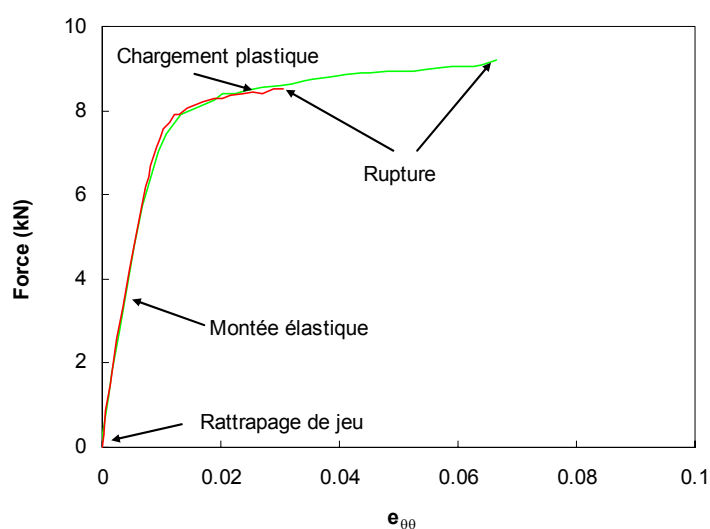


Figure 3-35 : Courbes force-déformation des deux essais EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 6%.

Les résultats des simulations de l'essai EDC sur la gaine vierge présentées dans la section 3.4.2 montrent que les courbes force-déformation ne sont pas sensibles au jeu pion/gaine (Figure 3-36). Les courbes force-déformation peuvent être comparées directement sans correction. Les courbes force-déformation de l'essai EDC sur des gaines dans les mêmes conditions d'oxydation montrent la bonne reproductibilité de l'essai EDC (Figure 3-35).

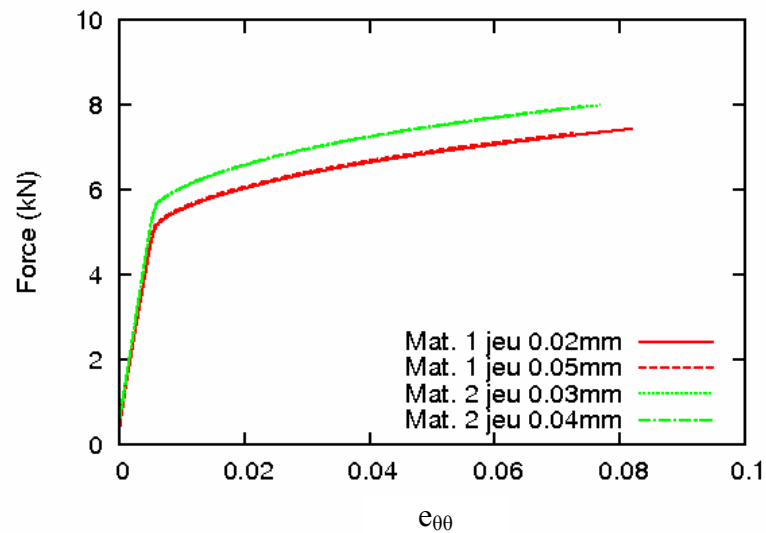


Figure 3-36 : Courbes force-déformation des simulations de l'essai EDC sur la gaine vierge avec différents jeux pion/gaine.





## 4 Comportement mécanique des gaines oxydées

Dans ce chapitre, les résultats de l'essai EDC sur les gaines qui ont subi l'essai d'oxydation décrit dans le chapitre 2 sont présentés. Le comportement des gaines oxydées est caractérisé par les courbes macroscopiques d'essai EDC. Les influences des paramètres d'oxydation, tels que le niveau d'oxydation décrit par l'ECR, la température d'oxydation et le scénario de refroidissement, sur le comportement des gaines oxydées sont étudiées. La ductilité des gaines oxydées est décrite par la déformation circonférentielle à rupture et l'évolution de la ductilité en fonction des conditions d'oxydation est obtenue.

Afin de déterminer le comportement de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées, les gaines oxydées sont sablées et caractérisées par l'essai EDC.

Enfin, la rupture des gaines oxydées dans l'essai EDC est analysée par les observations de la fissure, de la section coupée des gaines rompues et du faciès de rupture.

### 4.1 Description de l'essai EDC sur les gaines oxydées

#### 4.1.1 Eprouvettes

Les gaines à tester sont les gaines oxydées à 1100°C et à 1200°C puis trempées ou refroidies à l'air avec un ECR visé jusqu'à 17%. Pour chaque condition d'oxydation deux essais EDC sont effectués sur les tronçons E et F dont la longueur est de 25 mm (section 2.3.5). Les éprouvettes utilisent la nomenclature schématisée sur la Figure 4-1. Le Tableau 4-1 liste toutes les éprouvettes de l'essai EDC sur les gaines oxydées.

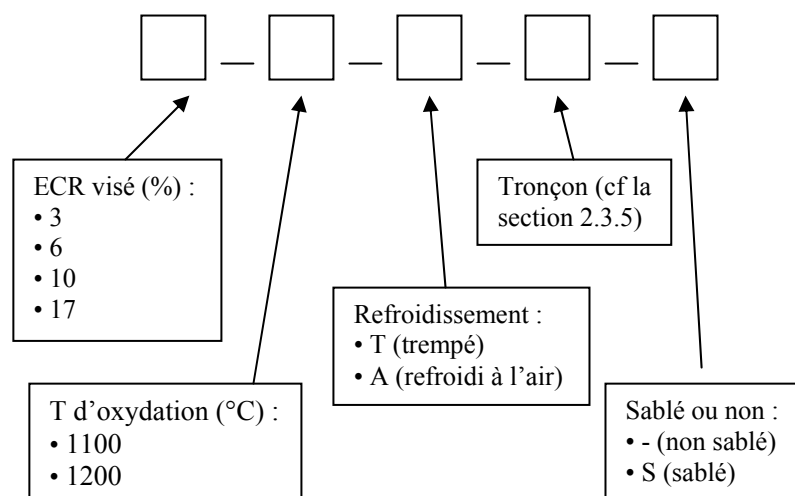


Figure 4-1 : Nomenclature réduite des gaines oxydées à haute température.

**Tableau 4-1 : Eprouvettes de l'essai EDC sur les gaines oxydées, leur diamètre interne, diamètre des pions utilisés et jeu pion/gaine.**

Eprouvette	Diamètre intérieur (mm)	Diamètre du pion (mm)	Jeu gaine/pion (mm)
6_1100_T_E	8,43	8,30	0,065
10_1100_T_E	8,39	8,35	0,020
10_1100_T_F	8,39	8,35	0,020
17_1100_T_E	8,38	8,35	0,015
17_1100_T_F	8,38	8,35	0,015
6_1100_A_E	8,40	8,30	0,050
6_1100_A_F	8,40	8,35	0,025
10_1100_A_E	8,44	8,40	0,020
10_1100_A_F	8,44	8,40	0,020
17_1100_A_E	8,42	8,35	0,035
17_1100_A_F	8,42	8,40	0,010
3_1200_T_E	8,37	8,35	0,010
3_1200_T_F	8,37	8,35	0,010
6_1200_T_E	8,40	8,35	0,025
6_1200_T_F	8,40	8,40	0,000
10_1200_T_E	8,44	8,40	0,020
10_1200_T_F	8,44	8,40	0,020
17_1200_T_E	8,42	8,30	0,060
17_1200_T_F	8,42	8,35	0,035
6_1200_A_E	8,37	8,35	0,010
6_1200_A_F	8,37	8,35	0,010
10_1200_A_E	8,38	8,35	0,015
10_1200_A_F	8,39	8,35	0,020
17_1200_A_E	8,40	8,35	0,025
17_1200_A_F	8,40	8,35	0,025

Les diamètres des éprouvettes et des pions utilisés ainsi que les jeux pion/gaine sont récapitulés dans le Tableau 4-1. On notera que lors de la simulation des essais sur gaines oxydées (section 5.5), les données géométriques propres à chaque éprouvette seront utilisées.

## 4.2 Courbes macroscopiques de l'essai EDC

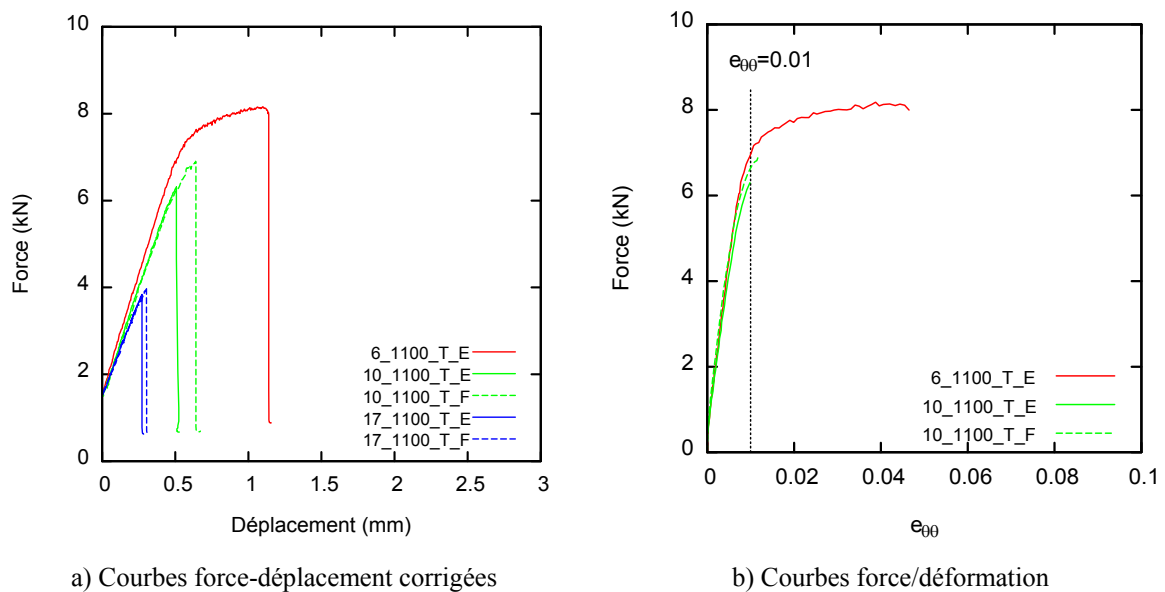
Les courbes macroscopiques de l'essai EDC (courbes force-déplacement corrigée et force-déformation) des gaines oxydées avec différents paramètres d'oxydation permettent d'étudier l'influence de ces paramètres sur le comportement mécanique.

### 4.2.1 Influence de l'ECR

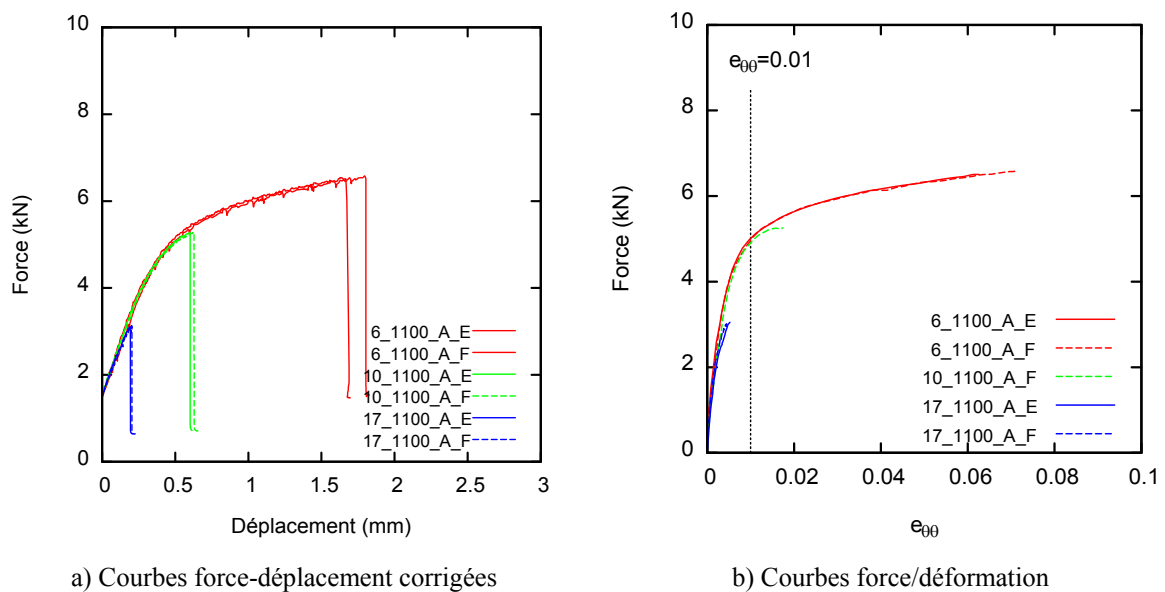
Les courbes force-déplacement corrigées et les courbes force-déformation de l'essai EDC sur gaines oxydées regroupées par la température d'oxydation et par le scénario de refroidissement (Figures 4-2 à 4-5) permettent de mettre en évidence l'influence de l'ECR sur le comportement mécanique des gaines oxydées.

L'augmentation de l'ECR a un effet fragilisant. Avec la même température d'oxydation et le même type de refroidissement, les gaines avec un ECR élevé rompent plus tôt que les gaines avec un ECR faible.

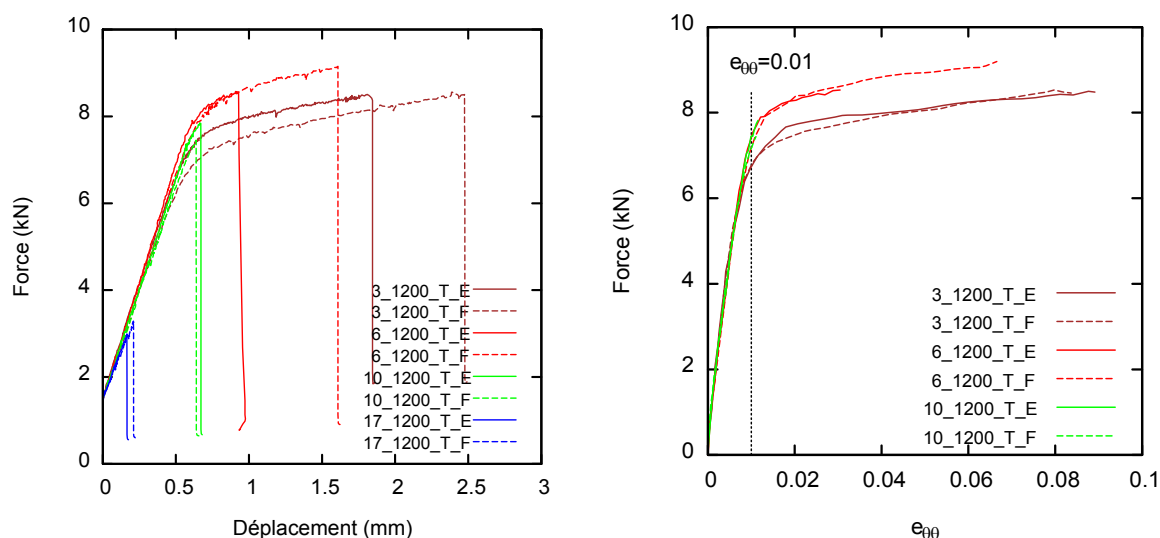
L'augmentation de l'ECR a aussi un effet durcissant sur les gaines dont le comportement présente une étape de charge plastique prononcée. En effet, parmi les gaines oxydées à 1200°C puis trempées, la gaine avec un ECR visé de 6% a un chargement plastique dont le niveau de force est plus élevé que la gaine avec un ECR visé de 3%.



**Figure 4-2 : Courbes de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1100°C puis trempées.**

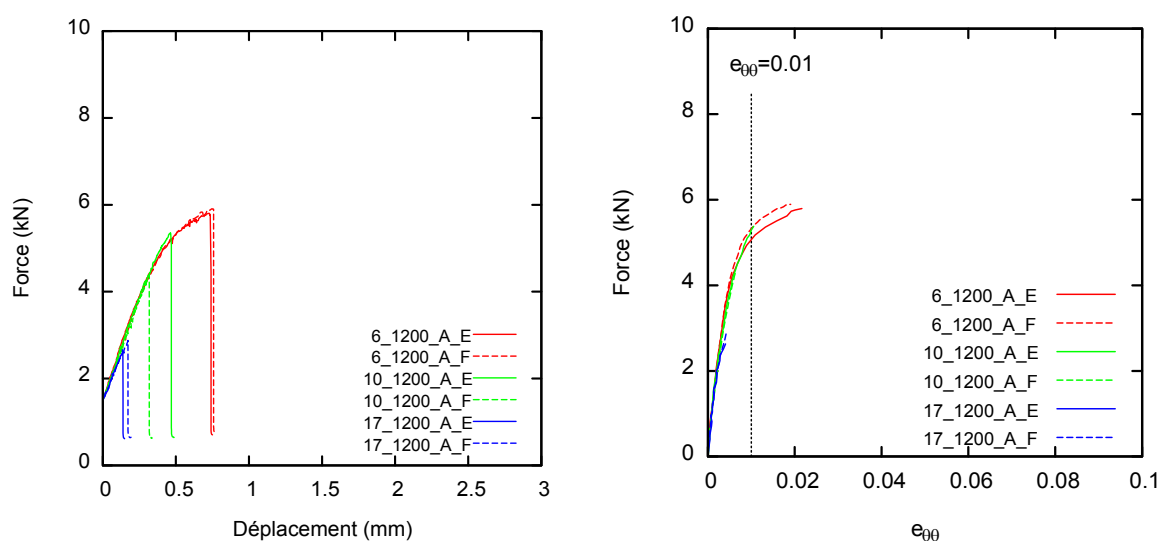


**Figure 4-3 : Courbes de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1100°C puis refroidies à l'air.**



a) Courbes force-déplacement corrigées

b) Courbes force/déformation

**Figure 4-4 : Courbes de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1200°C puis trempées.**

a) Courbes force-déplacement corrigées

b) Courbes force-déformation

**Figure 4-5 : Courbes de l'essai EDC sur les gaines oxydées à 1200°C puis refroidies à l'air.**

#### 4.2.2 Influence de la température d'oxydation

Les gaines ayant un même ECR visé ont des ECR réels très proches et donc des niveaux d'oxydation très proches. Les courbes force-déplacement de l'essai EDC des gaines oxydées regroupées par l'ECR visé (Figures 4-6 à 4-8) permettent tout d'abord d'illustrer l'influence de la température d'oxydation sur le comportement mécanique des gaines ayant le même niveau d'oxydation et le même scénario de refroidissement.

L'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C n'a pas d'influence sur la montée élastique mais augmente le niveau de force de l'étape de chargement plastique. L'augmentation de la température d'oxydation a ainsi un effet durcissant sur le comportement mécanique des gaines oxydées.

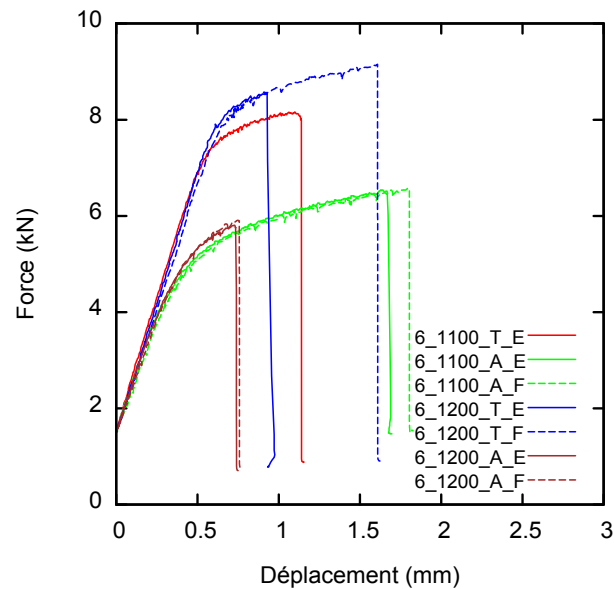


Figure 4-6 : Courbes force-déplacement des gaines avec un ECR visé de 6%.

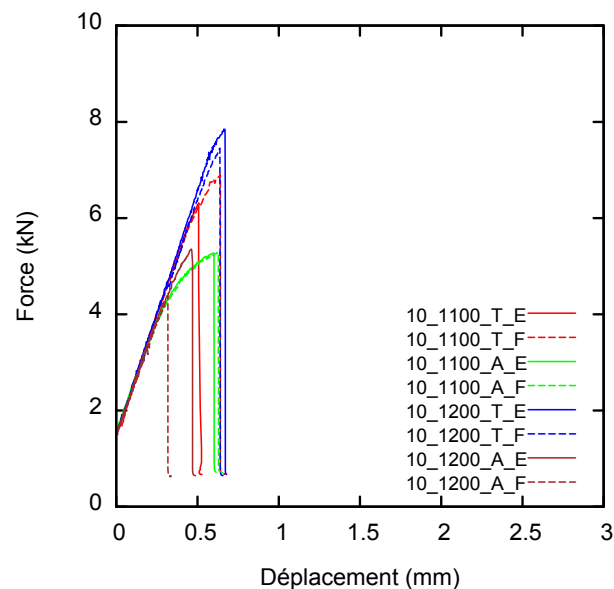


Figure 4-7 : Courbes force-déplacement des gaines avec un ECR visé de 10%.

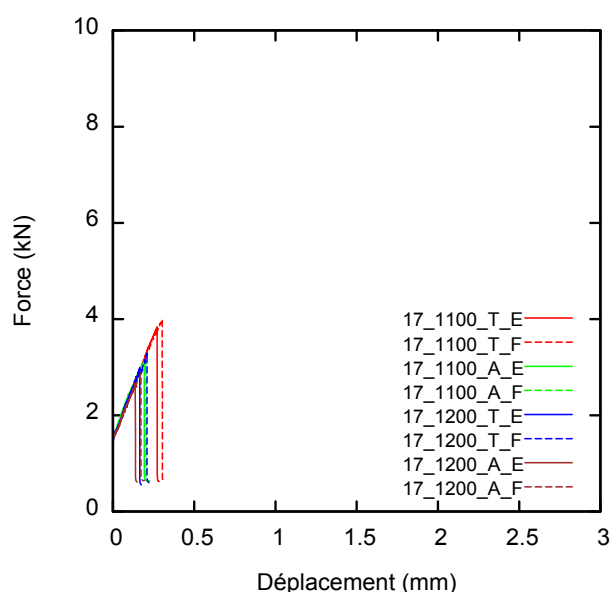


Figure 4-8 : Courbes force-déplacement des gaines avec un ECR visé de 17%.

### 4.2.3 Influence du scénario de refroidissement

Les Figures 4-6 à 4-8 permettent également d'illustrer l'influence du scénario de refroidissement sur le comportement mécanique des gaines ayant le même niveau d'oxydation et la même température d'oxydation.

Le scénario de refroidissement n'a pas d'influence sur la montée élastique. Les gaines trempées ont un niveau de force du chargement plastique beaucoup plus élevé que les gaines refroidies à l'air avec le même ECR visé et la même température d'oxydation. La trempe a ainsi un effet durcissant par rapport au refroidissement à l'air. L'effet durcissant de la trempe par rapport au refroidissement à l'air est plus important que l'effet durcissant de l'augmentation de la température d'oxydation.

## 4.3 Ductilité des gaines oxydées

### 4.3.1 Evolution de la ductilité

La déformation circonférentielle ( $\epsilon_{\theta\theta}$ ) à rupture dans un essai EDC est un bon indicateur de la ductilité des gaines oxydées. L'effet fragilisant du niveau d'oxydation est mis en évidence par l'évolution de la déformation circonférentielle à rupture des gaines oxydées en fonction du niveau d'oxydation représenté par l'ECR réel (Figure 4-9).

Les gaines avec un niveau d'oxydation de l'ordre de 7% d'ECR réel ont une dispersion de ductilités. Parmi les gaines avec un niveau d'oxydation de l'ordre de 7% d'ECR réel, les gaines oxydées à 1200°C peuvent présenter une ductilité plus basse que celles oxydées à 1100°C. Parmi les gaines avec un niveau d'oxydation de l'ordre de 12% d'ECR réel, la plage de ductilité occupée par les gaines oxydées à 1200°C est plus basse

que celle occupée par les gaines oxydées à 1100°C. L'augmentation de la température d'oxydation a ainsi un effet fragilisant.

On constate également des rôles inverses du scénario de refroidissement sur la ductilité des gaines oxydées pour les températures d'oxydation de 1100°C et 1200°C. Pour la température d'oxydation de 1100°C, la trempe diminue la ductilité des gaines par rapport au refroidissement à l'air, tandis que pour la température d'oxydation de 1200°C, la trempe augmente la ductilité des gaines. Ces différences d'influence de la température d'oxydation s'atténuent avec l'augmentation de l'ECR.

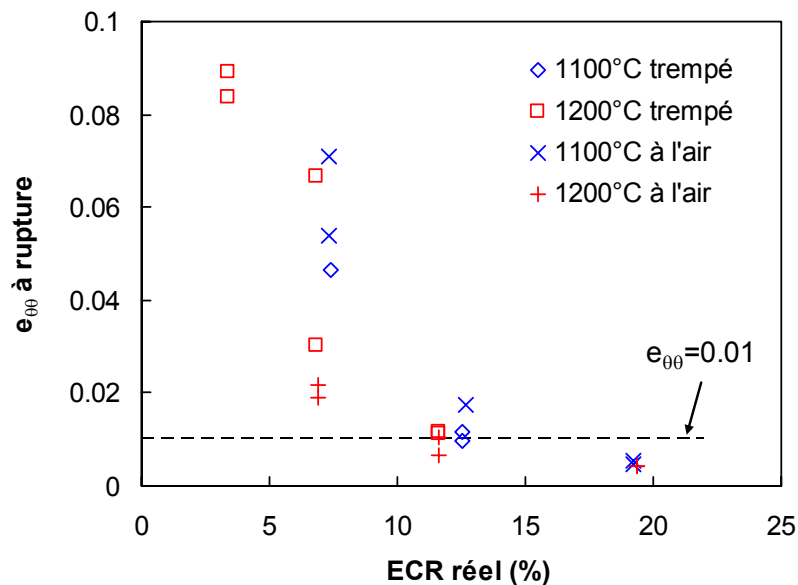


Figure 4-9 : Evolution de la ductilité des gaines oxydées en fonction de l'ECR réel.

#### 4.3.2 Transition ductile-fragile

Une catégorisation des comportements mécaniques des gaines oxydées peut s'effectuer par la présence ou non d'une étape de chargement plastique sur les courbes de l'essai EDC. Les gaines qui ont une étape prononcée de chargement plastique avant la rupture peuvent être considérées ductiles et celles qui rompent dans l'étape de montée élastique considérées fragiles. Comme illustré par les courbes force-déformation sur les Figures 4-2 à 4-5, une déformation circconférentielle à rupture de 0,01 permet de représenter la déformation à laquelle les courbes commencent à entrer dans l'étape de chargement plastique, pour tous les essais effectués sur les gaines oxydées. La déformation circconférentielle à rupture de 0,01 peut être considérée comme un seuil pour distinguer les comportements ductile et fragile.

La déformation circconférentielle n'est pas disponible pour les gaines oxydées puis trempées avec un ECR visé de 17% à cause de la desquamation de la couche  $ZrO_2$  (cf section 3.5), mais les courbes force-déplacement montrent qu'elles sont fragiles du fait que ces gaines rompent dans la montée élastique.

La transition ductile-fragile des gaines oxydées peut être présentée de la manière suivante :

- Les gaines qui ont une desquamation de la couche  $ZrO_2$  sont fragiles ;
- Les gaines qui n'ont pas de desquamation de la couche  $ZrO_2$  sont fragiles si elles rompent dans un essai EDC avec une déformation circonférentielle à rupture inférieure à 0,01.

En appliquant la transition ductile-fragile sur l'évolution de la ductilité des gaines oxydées (Figure 4-9), il est montré que la transition ductile-fragile a lieu pour un niveau d'oxydation entre 7% et 12% d'ECR réel.

Le niveau d'oxydation de 12% d'ECR réel correspond à 15% ECR-BJ (ECR calculé selon la corrélation Baker-Just, cf la section 2.2.2), qui est proche du critère de sûreté actuel de 17% d'ECR-BJ établi dans les années 1970 par l'essai de compression d'anneau. Plus récemment, L'Argonne National Laboratory (ANL) aux Etats-Unis ([BILL07]) et le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) en France ([BRAC01, PORT04]) ont caractérisé la ductilité des gaines en Zircaloy-4 oxydées à haute température par l'essai de compression d'anneau, l'essai de flexion et l'essai d'impact. La transition ductile-fragile a été corrélée avec le niveau d'oxydation calculé (représenté par l'ECR calculé à partir d'une cinétique d'oxydation, par exemple l'ECR-BJ) ou avec le niveau d'oxydation mesuré (représenté par l'ECR réel). Le Tableau 4-2 récapitule les résultats sur la gaine en Zircaloy-4 pour les températures d'oxydation de 1100°C et 1200°C.

**Tableau 4-2 : Transition ductile-fragile des gaines en Zircaloy-4 oxydées à haute température puis trempées.**

Etude	Oxydation	T oxy.	ECR-BJ (%)	ECR réel (%)
ANL <sup>6</sup>	Double faces	1100°C	24%	
		1200°C	12%	
CEA	Simple face	1100°C		17%
		1200°C		10%
Cette étude	Simple face	1100°C	15%	12%
		1200°C	15%	12%

Il faut noter que les matrices de niveau d'oxydation de ces études ne sont pas assez denses pour pouvoir obtenir un niveau d'oxydation de transition précis (par exemple dans l'étude de cette thèse, la matrice comporte 3%, 7%, 12% et 19% d'ECR réel). Il est considéré que les résultats de cette thèse sont en accord avec ceux de l'ANL et du CEA obtenus par l'essai de compression d'anneau. Une exception est que l'ECR de transition ductile-fragile des gaines oxydées à 1100°C obtenu par ANL est beaucoup plus élevé que celui obtenu dans cette thèse. Cela peut être lié au fait que dans l'essai de l'ANL, les gaines oxydées ont été refroidies lentement à 800°C avant la trempe. Brachet et al [BRAC08] ont étudié l'influence de la température à laquelle est effectuée la trempe sur la ductilité post-trempe. Dans leur étude, des gaines ont été oxydées à 1200°C avec un ECR réel de 2,8% puis refroidies en deux étapes : un refroidissement lent à des températures intermédiaires puis une trempe à l'eau. Leurs résultats montrent que, pour des gaines

<sup>6</sup> Après l'oxydation, les gaines sont refroidies intermédiairement à 800°C avant de subir une trempe à l'eau.



oxydées à 1200°C, la ductilité post-trempe dépend de la température de trempe, et la trempe à 800°C donne une ductilité comparable à celle par la trempe directe de la température d'oxydation. Or pour des gaines oxydées à 1100°C, aucune donnée sur l'influence de la température de trempe n'est disponible.

Enfin, il faut noter que la transition ductile-fragile déterminée dépend des choix d'indicateur de ductilité et de seuil de ductilité lors du post-traitement des essais mécaniques. Les indicateurs de ductilité utilisés liés aux essais de compression d'anneau, de flexion et d'impact sont plutôt des quantités liées à l'essai, qui dépend du montage d'essai et des dimensions des éprouvettes. Or, la déformation circonférentielle à rupture, indicateur de ductilité choisi pour l'essai EDC dans cette étude, est une quantité liée à la gaine, qui permet une application plus directe dans l'établissement des critères de sûreté basés sur la ductilité des gaines oxydées.

## 4.4 Essai EDC sur les gaines sablées

### 4.4.1 Sablage des gaines oxydées

Le comportement des gaines oxydées dépend des comportements des trois couches présentes dans des gaines oxydées : ex- $\beta$ ,  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$ . La couche  $\alpha(O)$  et la couche de zircone sont fragiles, et la couche ex- $\beta$  est la seule couche qui peut garder de la ductilité. La perte de ductilité d'une gaine oxydée peut être liée à la diminution de l'épaisseur de la couche ex- $\beta$  ou à la fragilisation de cette couche. Hobson et al [HOBS72, HOBS73] considèrent que la perte de ductilité est liée à la diminution de l'épaisseur de la couche ex- $\beta$ . Les études plus récentes [PAWE74, SAWA76, BRAC01, BRAC07, STER07] montrent que c'est plutôt la fragilisation de la couche ex- $\beta$  qui est la clef de la fragilisation en corrélant la ductilité avec la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$ .

La caractérisation du comportement de la couche ex- $\beta$  permet de clarifier le mécanisme de la fragilisation par l'oxydation à haute température, et de déterminer la dépendance du comportement de la gaine oxydée à la couche ex- $\beta$ . Pour caractériser le comportement de la couche ex- $\beta$  il faut enlever la couche  $\alpha(O)$  et la couche de zircone.

La technique de sablage permet d'enlever une proportion de matériau à la surface et est facile à mettre en œuvre. Dans cette étude la technique de sablage est employée pour enlever la couche  $\alpha(O)$  et la couche de zircone, afin d'obtenir des éprouvettes en une seule couche ex- $\beta$  (Figure 4-10).

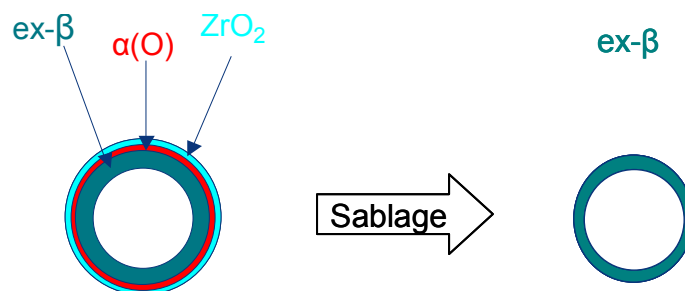


Figure 4-10 : Schéma du sablage d'une gaine oxydée à haute température.

Après le sablage, les épaisseurs des gaines sablées sont mesurées. Le sablage est satisfaisant car les gaines sablées présentent une variation d'épaisseur inférieure à 20  $\mu\text{m}$ . Avec la connaissance sur les épaisseurs des phases des gaines oxydées (section 2.4.2), la composition de couches de la gaine sablée par rapport à la gaine non sablée est calculée. Par exemple, la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 10% a une couche ex- $\beta$  de 440  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et une couche  $\alpha(\text{O})$  de 94  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, une gaine sablée dont l'épaisseur après le sablage est de 450  $\mu\text{m}$  comporte donc 440  $\mu\text{m}$  de couche ex- $\beta$  et 10  $\mu\text{m}$  de couche  $\alpha(\text{O})$ . Ramenée aux épaisseurs des couches ex- $\beta$  et  $\alpha(\text{O})$  de la gaine non-sablée, cette gaine sablée comporte 100% de la couche ex- $\beta$  et 11% de la couche  $\alpha(\text{O})$  de la gaine non-sablée. Le Tableau 4-3 récapitule les gaines sablées et leurs compositions de couches par rapport aux gaines non-sablées. Pour toutes les gaines sablées, la couche de zircone est complètement enlevée. Pour la plupart des gaines sablées, une proportion de la phase  $\alpha(\text{O})$  reste après le sablage. Cela permet de garder la totalité de la couche ex- $\beta$ .

**Tableau 4-3 : Sablage des gaines oxydées à haute température.**

Gaine	Tronçon	Référence	Epaisseur après le sablage ( $\mu\text{m}$ )	Composition après le sablage par rapport à la gaine non-sablée
6% 1100°C trempé	C	6_1100_T_C_S	475	96% ex- $\beta$
10% 1100°C trempé	B	10_1100_T_B_S	515	100% ex- $\beta$ + 86% $\alpha(\text{O})$
	C	10_1100_T_C_S	400	92% ex- $\beta$
17% 1100°C trempé	C	17_1100_T_C_S	380	100% ex- $\beta$ + 13% $\alpha(\text{O})$
6% 1100°C à l'air	B	6_1100_A_B_S	540	100% ex- $\beta$ + 76% $\alpha(\text{O})$
10% 1100°C à l'air	C	10_1100_A_C_S	430	100% ex- $\beta$ + 5% $\alpha(\text{O})$
17% 1100°C à l'air	C	17_1100_A_C_S	400	100% ex- $\beta$ + 25% $\alpha(\text{O})$
3% 1200°C trempé	C	3_1200_T_C_S	560	-
6% 1200°C trempé	C	6_1200_T_C_S	520	100% ex- $\beta$ + 37% $\alpha(\text{O})$
10% 1200°C trempé	A	10_1200_T_A_S	450	100% ex- $\beta$ + 11% $\alpha(\text{O})$
	B	10_1200_T_B_S	530	100% ex- $\beta$ + 96% $\alpha(\text{O})$
	C	10_1200_T_C_S	380	86% ex- $\beta$
17% 1200°C trempé	C	17_1200_T_C_S	380	100% ex- $\beta$ + 19% $\alpha(\text{O})$
6% 1200°C à l'air	C	6_1200_A_C_S	515	100% ex- $\beta$ + 30% $\alpha(\text{O})$
10% 1200°C à l'air	C	10_1200_A_C_S	455	100% ex- $\beta$ + 14% $\alpha(\text{O})$
17% 1200°C à l'air	C	17_1200_A_C_S	390	100% ex- $\beta$ + 23% $\alpha(\text{O})$

#### 4.4.2 Comportement de la couche ex- $\beta$

Le comportement des gaines sablées est caractérisé par l'essai EDC effectué avec la même vitesse de chargement que pour les gaines oxydées non-sablées.

Les courbes de l'essai EDC des tronçons sablés et des tronçons non-sablés de la même gaine oxydée permettent d'illustrer le rôle des trois couches dans le comportement mécanique de la gaine. La Figure 4-11 montre les courbes de l'essai EDC des tronçons sablés et non-sablés de la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 10%.

Pour cette gaine, trois tronçons sablés de différentes épaisseurs sont disponibles. L'intégralité des courbes de l'essai EDC des gaines sablées est présentée dans l'Annexe C.

Les courbes force-déplacement montrent tout d'abord que l'existence d'une couche  $\alpha(O)$  résiduelle après le sablage n'a pas d'influence sur le comportement, par exemple, les tronçons 10\_1200\_T\_A\_S (100% ex- $\beta$  + 11%  $\alpha(O)$ ) et 10\_1200\_T\_B\_S (100% ex- $\beta$  + 96%  $\alpha(O)$ ) ont le même comportement avant rupture (Figure 4-11a). Le comportement d'un tronçon sablé ayant une couche  $\alpha(O)$  restante après le sablage peut être assimilé au comportement d'un tronçon qui ne comporte que la couche ex- $\beta$ . En effet, la couche  $\alpha(O)$  est déjà multi fissurée après l'oxydation, et de plus une couche  $\alpha(O)$  qui reste après le sablage peut être endommagée par le sablage à cause de sa nature fragile.

Les comportements des tronçons 10\_1200\_T\_A\_S et 10\_1200\_T\_B\_S et les tronçons non-sablés (Figure 4-11a) montrent que l'existence des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  a peu d'influence sur la montée élastique. Ce phénomène est constaté sur toutes les autres gaines. En effet, lorsque le niveau d'oxydation est faible (ECR visé inférieur à 10%), les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  sont minces, et leur participation à la montée élastique est faible. Lorsque le niveau d'oxydation est élevé (ECR visé de 17%), les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  sont épaisses. Or, avec ce fort niveau d'oxydation, les gaines trempées ont une desquamation de la couche  $ZrO_2$ , et les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  des gaines refroidies à l'air peuvent être endommagées par la dilatation de volume d'une couche  $ZrO_2$  épaisse. La participation des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  sur la montée élastique est également faible.

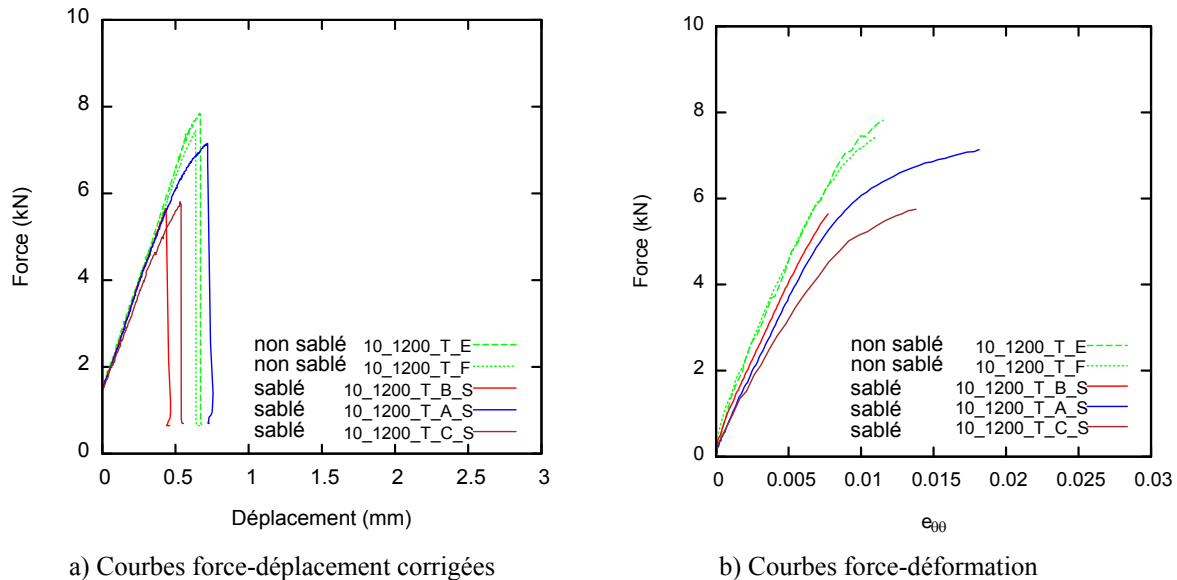
L'existence des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  augmente le niveau de force de l'étape de chargement plastique. Vu que la couche  $\alpha(O)$  est déjà multi fissurée après l'oxydation, l'augmentation du niveau de force peut être attribuée à la présence de la couche  $ZrO_2$ . L'augmentation du niveau de force est plus marquée pour les gaines trempées que pour les gaines refroidies à l'air. Comme la déformation de la gaine dans l'étape de chargement plastique est importante, la couche  $ZrO_2$  peut être endommagée par la déformation à cause de sa nature fragile. Cela implique que la couche  $ZrO_2$  des gaines refroidies à l'air s'endommage plus facilement que celle des gaines trempées.

Les comportements des tronçons 10\_1200\_T\_A\_S (100% ex- $\beta$  + 11%  $\alpha(O)$ ) et 10\_1200\_T\_C\_S (86% ex- $\beta$ ) montrent que la rigidité de la montée élastique de la gaine porte sur la couche ex- $\beta$ .

Enfin, les résultats montrent que le sablage des couches  $ZrO_2$  et  $\alpha(O)$  ne modifie pas la ductilité de la gaine. De plus les courbes d'essai des tronçons 10\_1200\_T\_A\_S (100% ex- $\beta$  + 11%  $\alpha(O)$ ) et 10\_1200\_T\_C\_S (86% ex- $\beta$ ) montrent que la diminution de l'épaisseur de la couche ex- $\beta$  ne diminue pas la ductilité. La ductilité des gaines oxydées est donc déterminée par le comportement de la couche ex- $\beta$ .

La Figure 4-11b montre un exemple des courbes force-déformation de l'essai EDC des gaines sablées. Il faut noter que la déformation circonférentielle est mesurée sur la surface extérieure du tronçon testé par l'essai EDC. Pour les tronçons non sablés la déformation de la surface extérieure de la couche  $ZrO_2$  est mesurée, tandis que pour les tronçons sablés la déformation de la couche  $\alpha(O)$  ou de la couche ex- $\beta$  est mesurée. La

différence entre les courbes force-déformation peut être liée à la différence des positions de mesure. Cela implique la présence d'un gradient de déformation circonférentielle dans la gaine oxydée.



**Figure 4-11 : Courbes de l'essai EDC sur les gaines sablées, pour les gaines oxydées à 1200°C puis trempées avec ECR visé de 10%**

Le comportement de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées sera modélisé dans le chapitre 5.

#### 4.4.3 Mécanisme de la fragilisation des gaines oxydées

La ductilité des gaines oxydées est déterminée par la ductilité de la couche ex- $\beta$ . L'évolution de la ductilité des gaines oxydées présentée dans la section 4.3.1 peut être expliquée par l'influence des paramètres d'oxydation sur la couche ex- $\beta$ .

Pour les gaines oxydées à 1200°C puis trempées, la fragilisation liée à l'augmentation du niveau d'oxydation d'ECR réel de 7% à 12% est due à l'augmentation de la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$ . Par contre, pour les gaines oxydées à 1100°C puis trempées, la fragilisation liée à l'augmentation du niveau d'oxydation d'ECR réel de 7% à 12% est due à la formation d'incursions  $\alpha(O)$  car la teneur en oxygène de la matrice de la couche ex- $\beta$  diminue. L'augmentation de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  et la formation des incursions  $\alpha(O)$  sont liées à l'augmentation de la prise d'oxygène de la couche ex- $\beta$ . La fragilisation par l'augmentation du niveau d'oxydation est causée de la prise d'oxygène de la couche ex- $\beta$ .

Pour les gaines trempées avec un ECR réel de l'ordre de 7%, l'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C ne modifie pas la teneur en oxygène moyenne de la couche ex- $\beta$ , par contre, elle augmente la dispersion de la teneur en oxygène. Une dispersion de la ductilité des gaines oxydées à 1200°C puis trempées avec

un ECR réel de l'ordre de 7% est observée. Cette dispersion peut être due à la dispersion de la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$ . Des teneurs en oxygène locales élevées dans la couche ex- $\beta$ , peuvent rendre certaines zones plus fragiles dans la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées à 1200°C que dans celle des gaines oxydées à 1100°C. Des ductilités plus faibles peuvent être alors mesurées sur les gaines oxydées à 1200°C.

L'influence du scénario de refroidissement sur la ductilité peut résider dans le fait que la couche ex- $\beta$  des gaines trempées et refroidies à l'air présente différentes microstructures.

## 4.5 Rupture des gaines oxydées dans l'essai EDC

### 4.5.1 Rupture des gaines oxydées

Les gaines oxydées rompent par une fissuration axiale dans l'essai EDC. Pour les gaines trempées, la rupture est accompagnée d'une desquamation de la couche  $ZrO_2$  (Figure 4-12). Les gaines avec un ECR visé inférieur à 10% ont une couche  $ZrO_2$  (couche extérieure noire) adhérente avant l'essai EDC. Lors de la rupture dans l'essai EDC, la couche  $ZrO_2$  de la gaine avec un ECR visé de 10% est complètement desquamée (Figure 4-12c), et celle des gaines avec des ECR visé de 3% et 6% est desquamée dans la zone de transition (Figure 4-12a et Figure 4-12b). La zone de transition est la zone qui se situe entre la partie déformée et la partie non déformée de la gaine dans un essai EDC. La couche  $ZrO_2$  de la gaine avec un ECR visé de 17% est partiellement desquamée par la trempe, la couche  $ZrO_2$  restante de cette gaine est desquamée lors de la rupture dans un essai EDC (Figure 4-12d).

Pour les gaines refroidies à l'air, lors de la rupture dans un essai EDC, la couche  $ZrO_2$  ne desquame pas (Figure 4-13b et Figure 4-13c) ou ne desquame que dans la zone de transition (Figure 4-13c).

La fissuration axiale peut traverser toute la longueur de la gaine (Figures 4-12b, 4-12c, 4-12d, 4-13b et 4-13c) ou s'arrêter avant d'aboutir aux extrémités (Figure 4-12a et Figure 4-13a). La bifurcation à partir de la zone de transition de la fissuration axiale est constatée pour certaines gaines (Figure 4-12c).

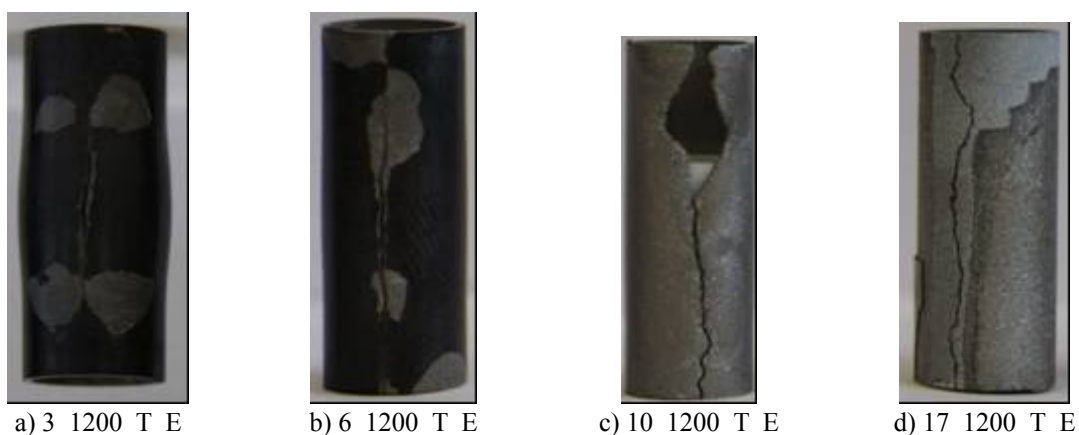
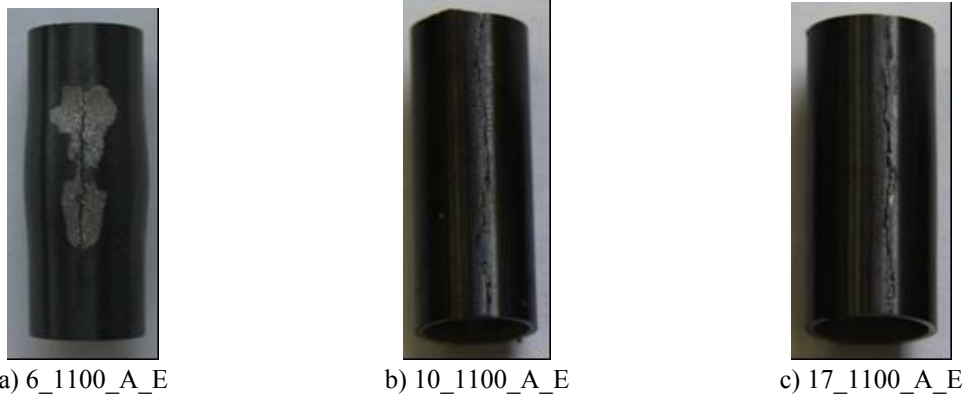


Figure 4-12 : Rupture des gaines oxydées à 1200°C puis trempées.



**Figure 4-13 : Rupture des gaines oxydées à 1100°C puis refroidies à l'air.**

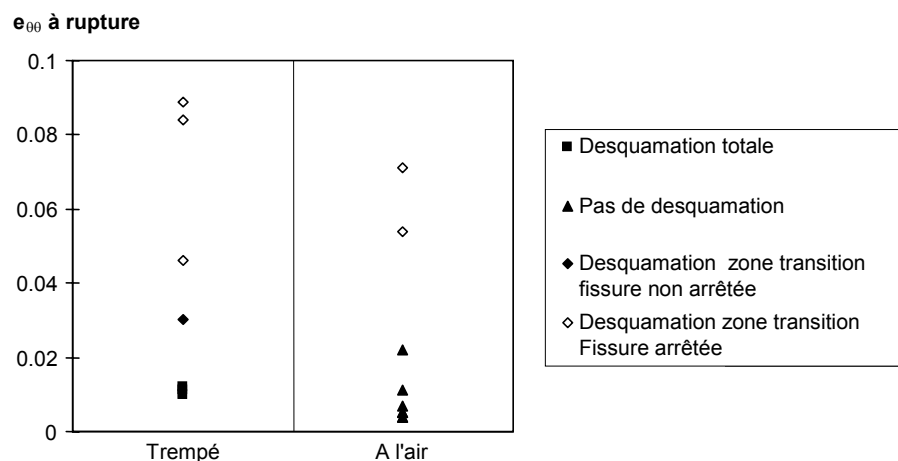
La totalité des photos des ruptures est présentée dans l'Annexe D. Le Tableau 4-4 récapitule les modes de la fissuration à la rupture des gaines oxydées dans l'essai EDC. Les déformations circonférentielles à rupture  $y$  sont également indiquées. La desquamation totale de la couche  $ZrO_2$  des gaines avec un ECR visé supérieur à 10% lors de la rupture implique un endommagement de l'interface  $\alpha(O)/ZrO_2$  par la forte contrainte thermique engendrée par la trempe. Par contre les gaines trempées avec un ECR visé inférieur à 6% n'ont pas de desquamation totale de la couche  $ZrO_2$  lors de la rupture, car leur couche  $ZrO_2$  est moins épaisse, la trempe entraîne une contrainte thermique moins forte et l'interface  $\alpha(O)/ZrO_2$  est moins endommagée.

La corrélation des modes de desquamation de la couche  $ZrO_2$  et la déformation circonférentielle à rupture (Figure 4-14) montre que la desquamation de la zone de transition n'a lieu que pour une déformation circonférentielle élevée. La zone de transition entre la zone déformée et la zone non déformée est dominée par une flexion, qui entraîne une compression à l'extérieur de la gaine. Plus la déformation de la gaine est grande, plus cette compression est importante. Une compression importante desquame la couche  $ZrO_2$  par un effet de flambement lorsque la contrainte dans la couche ex- $\beta$  est relâchée par la rupture.

La Figure 4-14 montre également que plus la déformation de la gaine est élevée avant la rupture, plus la fissure traverse difficilement toute la longueur de la gaine. En effet, une partie de l'énergie de déformation est absorbée par la déformation plastique de la couche ex- $\beta$ , qui diminue l'énergie restituée lors de la rupture.

**Tableau 4-4 : Rupture des gaines oxydées dans l'essai EDC.**

Eprouvette	$e_{\theta\theta}$ à rupture	Desquamation de la couche $ZrO_2$	Fissuration arrêtée	Remarque
6_1100_T_E	0,046	Zone transition	Oui	
10_1100_T_E	0,010	Totale	Non	
17_1100_T_E	-	Totale	Non	Desquamation avant l'essai EDC
6_1100_A_E	0,054	Zone transition	Oui	
6_1100_A_F	0,071	Zone transition	Oui	
10_1100_A_E	-	Non	Non	
17_1100_A_E	0,005	Non	Non	
17_1100_A_F	0,005	Non	Non	
3_1200_T_E	0,089	Zone transition	Oui	
3_1200_T_F	0,084	Zone transition	Oui	
6_1200_T_E	0,030	Zone transition	Non	
10_1200_T_E	0,012	Totale	Non	Bifurcation
10_1200_T_F	0,011	Totale	Non	Bifurcation
17_1200_T_E	-	Totale	Non	Desquamation avant l'essai EDC
6_1200_A_E	0,022	Non	Non	
10_1200_A_E	0,011	Non	Non	
10_1200_A_F	0,007	Non	Non	
17_1200_A_E	0,004	Non	Non	
17_1200_A_F	0,004	Non	Non	

**Figure 4-14 : Modes de desquamation de la couche  $ZrO_2$  et déformation circonférentielle à rupture.**

### **4.5.2 Observation des sections des gaines rompues par l'essai EDC**

Après l'essai EDC, la section qui se situe au milieu de la zone déformée des gaines rompues est coupée et observée au microscope optique. Le processus de préparation des échantillons pour l'observation (enrobage et polissage) est identique à celui mis en œuvre pour observer la section des gaines oxydées décrit dans le chapitre 2.

#### **Couche ex- $\beta$**

L'observation de la section des gaines rompues permet tout d'abord de visualiser la forme de la fissure finale. La Figure 4-15 et la Figure 4-16 montrent les fissures de l'ex- $\beta$  de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 6% et la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR de 10%. La couche ex- $\beta$  de ces deux gaines est composée d'une phase ex- $\beta$  plutôt homogène. Ces fissures ont un angle d'à peu près 45° par rapport au sens circonférentiel selon lequel la gaine est chargée en traction dans l'essai EDC. Ces fissures correspondent à une rupture par cisaillement, qui est la rupture typique pour un matériau ductile.

La Figure 4-17 montre la fissure dans la couche ex- $\beta$  de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 17%. La couche ex- $\beta$  de cette gaine présente une phase ex- $\beta$  et des incursions  $\alpha(O)$ . La partie de fissure qui traverse les incursions  $\alpha(O)$  présente un angle plutôt perpendiculaire au sens circonférentiel. Cela implique que les incursions  $\alpha(O)$  rompent en mode fragile. Par contre la partie de la fissure qui traverse la matrice de la couche ex- $\beta$  est inclinée, ce qui implique que la matrice de la couche ex- $\beta$  de cette gaine rompt en mode ductile.

La fissuration radiale des incursions  $\alpha(O)$  est observée dans la zone loin de la fissure de l'ex- $\beta$  (Figure 4-18). Il est donc très probable que les incursions  $\alpha(O)$  fissurent avant la rupture finale de la gaine. Pour la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 17%, la couche ex- $\beta$  présente une proportion d'incursions  $\alpha(O)$  importante. Bien que la matrice de la couche ex- $\beta$  soit ductile, le comportement macroscopique de cette gaine est fragile car la fissuration des incursions  $\alpha(O)$  entraîne une contrainte très élevée dans la matrice ex- $\beta$ , contrainte que la matrice ex- $\beta$  ne peut supporter et qui déclenche la rupture finale de la gaine.



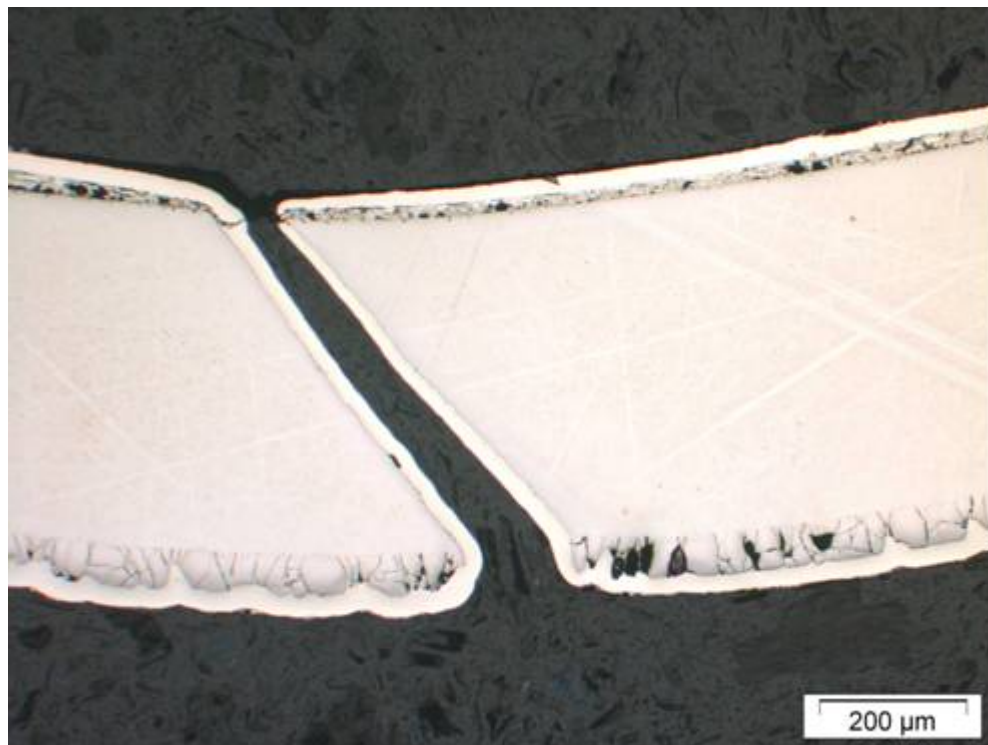


Figure 4-15 : Fissure de la gaine 6\_1100\_T\_E rompue à  $\epsilon_{00}=0,044$ .

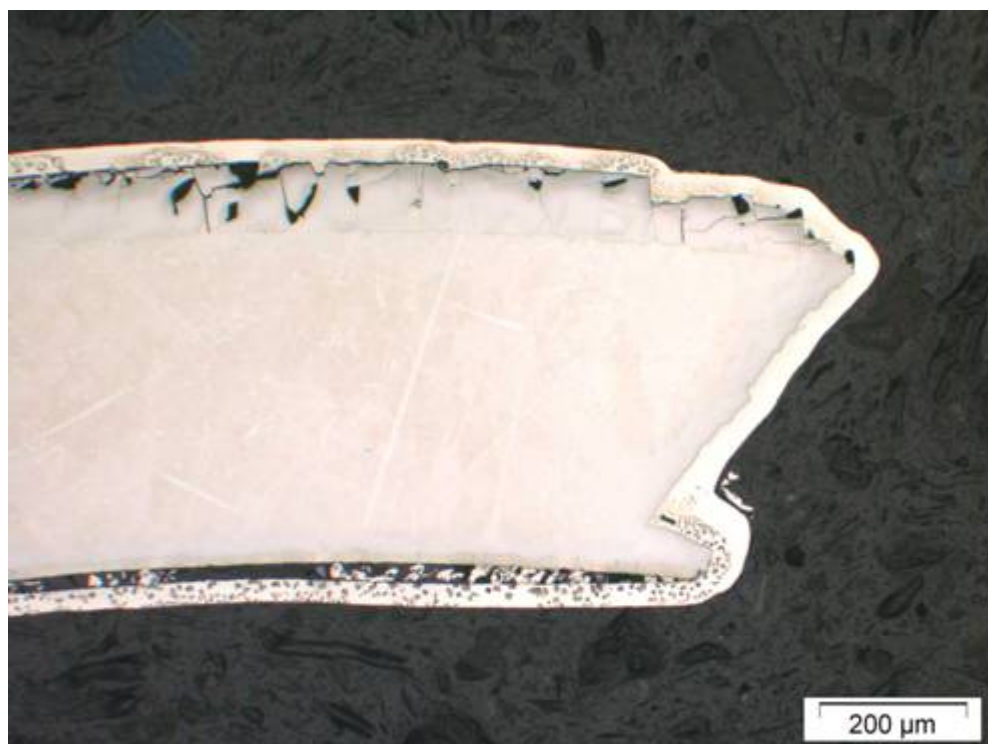


Figure 4-16 : Fissure de la gaine 10\_1200\_T\_E rompue à  $\epsilon_{00}=0,012$ .

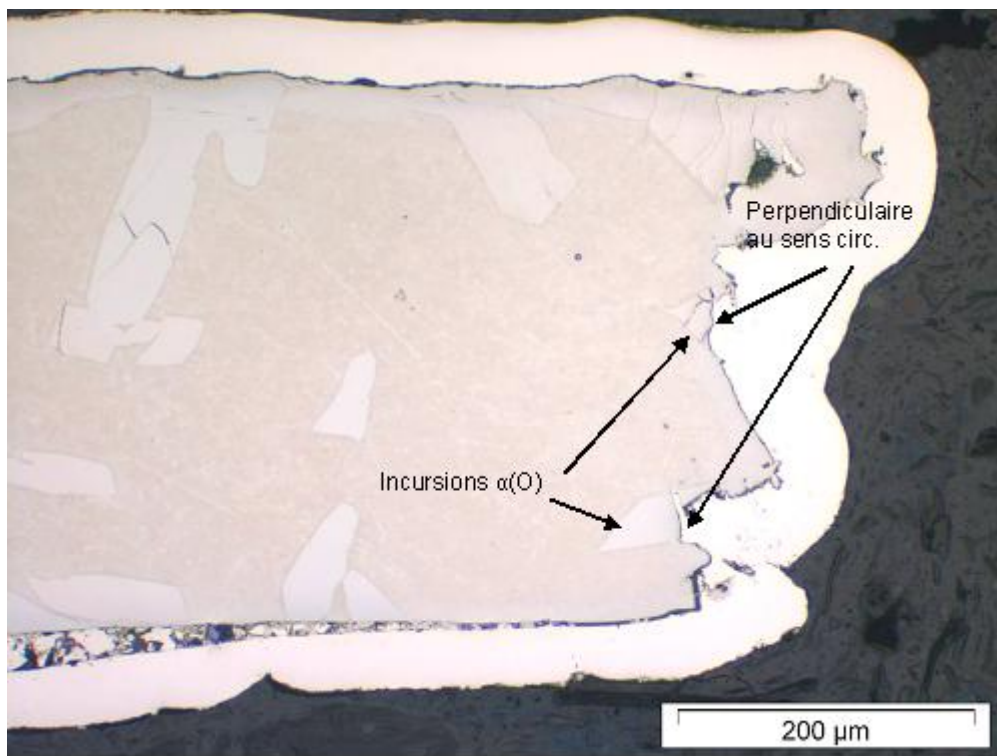


Figure 4-17 : Fissure de la gaine 17\_1100\_T\_C\_S rompue à  $\epsilon_{00}=0,006$

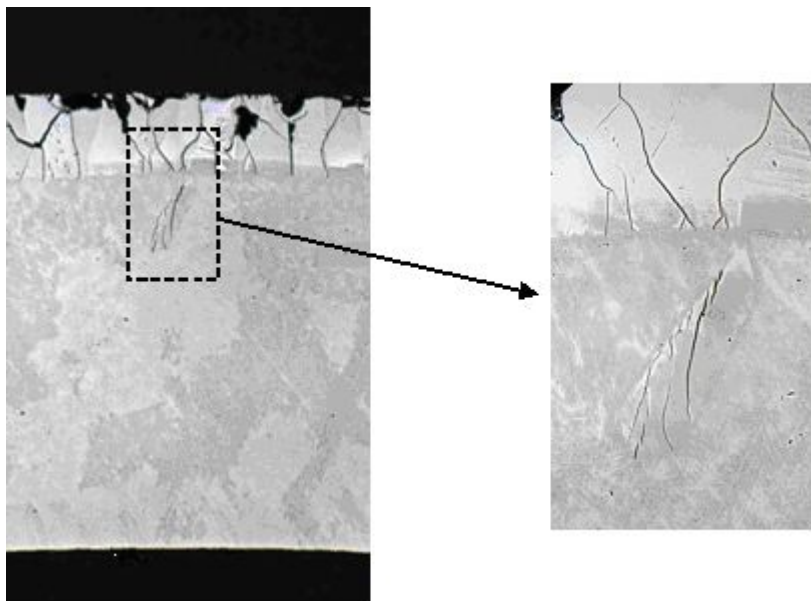


Figure 4-18 : Fissuration de l'incursion  $\alpha(O)$  de la gaine 10\_1100\_T\_E rompue à  $\epsilon_{00}=0,010$ .

Les gaines oxydées puis refroidies à l'air, même celles très ductiles, présentent une fissure de l'ex- $\beta$  moins régulière que la fissure par cisaillement des gaines trempées (Figure 4-19). Cela peut être lié à la structure à lamelles de la couche ex- $\beta$ .

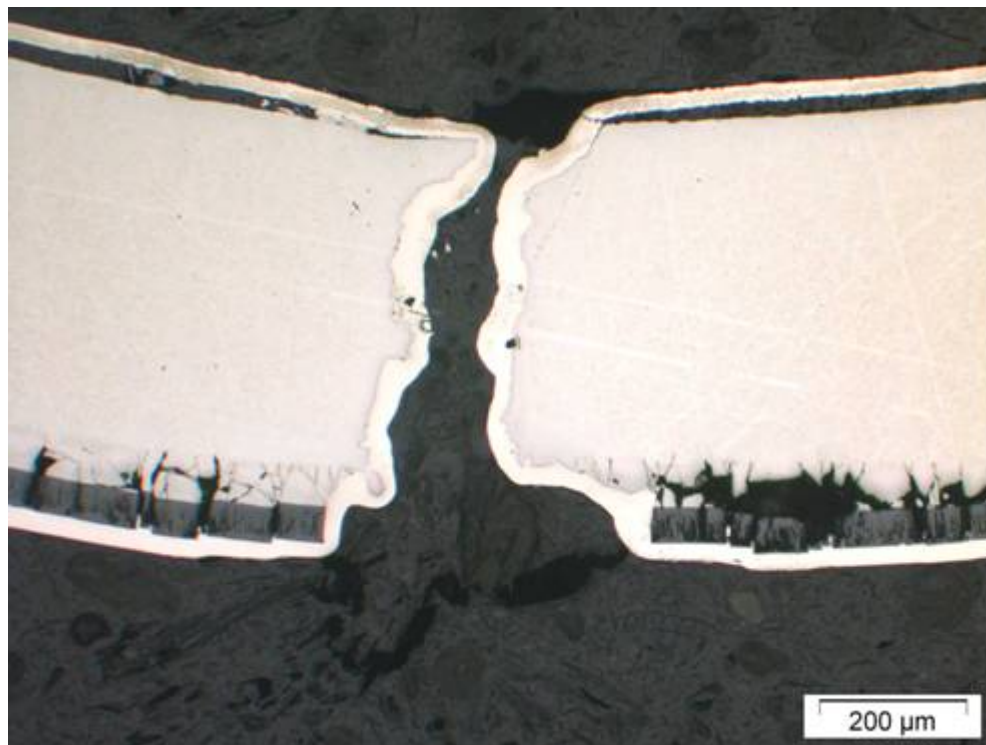


Figure 4-19 : Fissure de l'ex-β de la gaine 6\_1100\_A\_2 rompue à  $e_{00}=0,072$ .

### Couche $\alpha(O)$ et $ZrO_2$

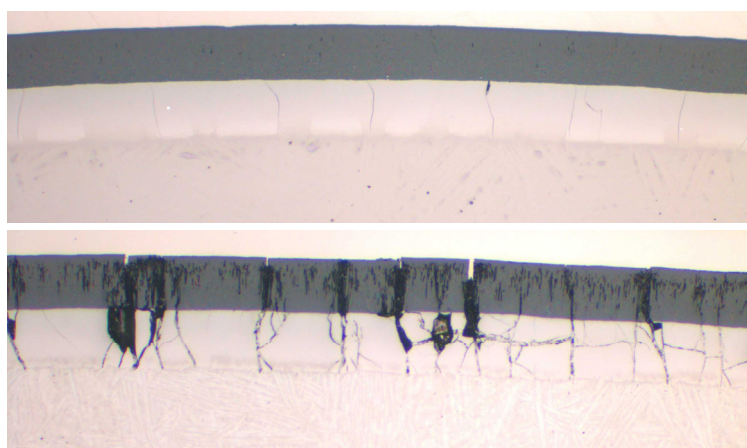
Les Figures 4-20 à 4-22 montrent les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air après l'essai EDC. Les observations des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  à l'issue de l'oxydation sont également présentées pour comparaison. Après l'essai EDC, il y a une multiplication du nombre de fissures dans la couche  $\alpha(O)$  pour les gaines 6\_1100\_A\_F et 10\_1100\_A\_E. En revanche, pour la gaine 10\_1200\_A\_F qui rompt à une déformation circonférentielle plus faible, la multiplication du nombre de fissures dans la couche  $\alpha(O)$  n'est pas évidente. La déformation circonférentielle semble être le facteur pour créer de nouvelles fissures dans la couche  $\alpha(O)$ .

Lorsque la déformation circonférentielle est élevée, la couche  $\alpha(O)$  est endommagée radialement. Un exemple est montré par la gaine la gaine 6\_1100\_A\_F qui rompt à  $e_{00}=0,071$  (Figure 4-20).

Il est constaté sur la Figure 4-20 et la Figure 4-21 que la couche  $ZrO_2$  de la gaine après l'essai EDC est fissurée, et que les fissures se trouvent dans le prolongement des fissures de la couche  $\alpha(O)$ . Il est donc très probable que les fissures de la couche  $ZrO_2$  s'amorcent à l'interface  $\alpha(O)/ZrO_2$  par la concentration de contrainte créée par les fissures dans la couche  $\alpha(O)$ .

La fissuration de la couche  $ZrO_2$  nécessite un niveau minimal de déformation. Par exemple, pour la gaine 10\_1200\_A\_2 (Figure 4-22) qui rompt à une déformation circonférentielle faible ( $e_{00}$  à rupture de 0,007), aucune fissure qui traverse toute la couche  $ZrO_2$  n'est observée. En effet, lorsque la déformation circonférentielle est faible, la concentration de contrainte n'est pas assez élevée pour fissurer la couche  $ZrO_2$ .

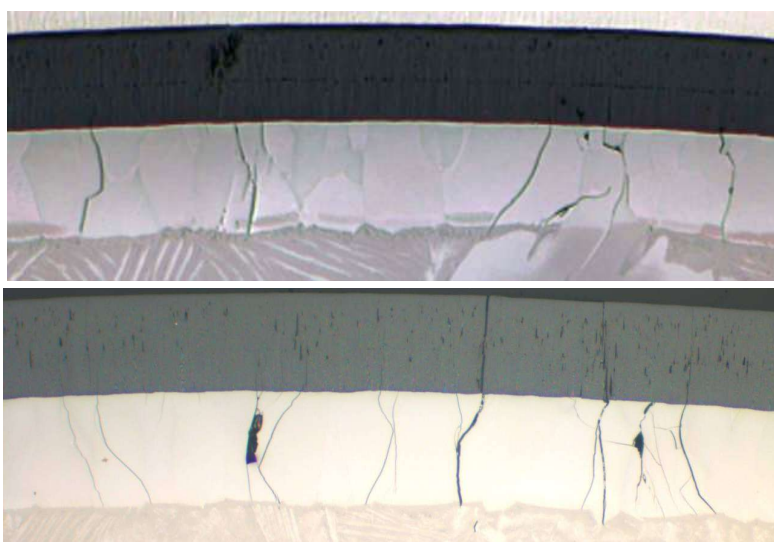




avant l'essai EDC

après l'essai EDC  
 $\epsilon_{00}=0,071$

Figure 4-20: Couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  du tronçon 6\_1100\_A\_F après l'essai EDC.



avant l'essai EDC

après l'essai EDC  
 $\epsilon_{00}=0,018$

Figure 4-21: Couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  du tronçon 10\_1100\_A\_E après l'essai EDC.

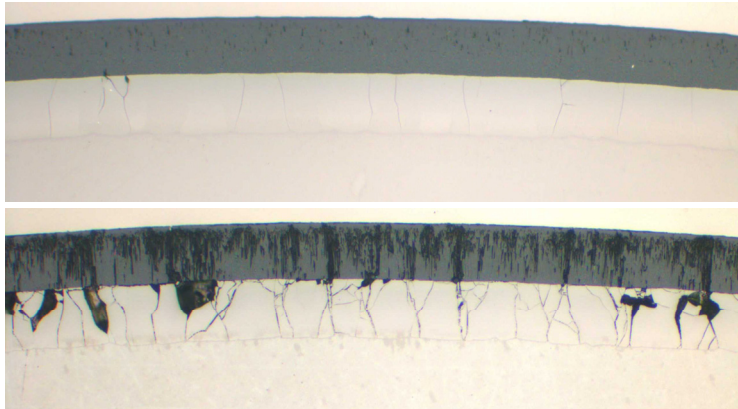


avant l'essai EDC

après l'essai EDC  
 $\epsilon_{00}=0,007$

Figure 4-22 : Couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  de la gaine 10\_1200\_A\_F après l'essai EDC.

Pour les gaines trempées, dont la couche  $\text{ZrO}_2$  n'est pas desquamée lors de la rupture, la multiplication du nombre de fissures dans la couche  $\alpha(\text{O})$  et la multi fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$  sont observées. Par exemple, la Figure 4-23 montre les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  de la gaine oxydée à  $1100^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 6% dont la couche  $\text{ZrO}_2$  au milieu de la zone déformée n'a pas desquamé lors de la rupture.

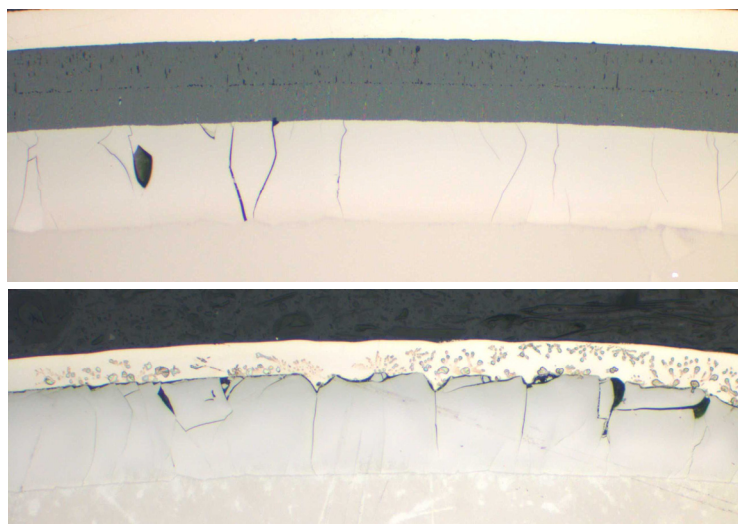


avant l'essai EDC

après l'essai EDC  
 $\epsilon_{00}=0,072$

Figure 4-23 : Couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  du tronçon 6\_1100\_T\_E après l'essai EDC.

L'observation sur la gaine oxydée puis trempée avec un ECR visé de 10% dont la couche  $\text{ZrO}_2$  est desquamée lors de la rupture montre que la desquamation a lieu à l'interface  $\text{ZrO}_2/\alpha(\text{O})$  et la couche  $\text{ZrO}_2$  desquamée peut arracher une partie de la couche  $\alpha(\text{O})$  (Figure 4-24).



avant l'essai EDC

après l'essai EDC  
 $\epsilon_{00}=0,011$

Figure 4-24 : Couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  du tronçon 10\_1200\_T\_F après l'essai EDC.

### 4.5.3 Fissuration de la couche $\text{ZrO}_2$

#### Observation de la surface externe de la couche $\text{ZrO}_2$

La multi fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$  est observée également par la microscopie électronique à balayage (MEB) sur la surface extérieure. L'observation est effectuée sur le côté opposé à la fissure finale, et au milieu de la zone déformée. La multi fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$  semble liée à la déformation de la gaine. Par exemple la gaine 10\_1200\_A\_E rompue à  $\epsilon_{00}=0,055$  (Figure 4-26) présente un réseau de fissures de la couche  $\text{ZrO}_2$  plus dense que la gaine 10\_1200\_A\_E rompue à  $\epsilon_{00}=0,012$  (Figure 4-25). Aucune fissure de la couche  $\text{ZrO}_2$  n'est observée sur la gaine 17\_1200\_A\_1 qui a rompu à une déformation circonférentielle maximale de 0,005 (Figure 4-27).

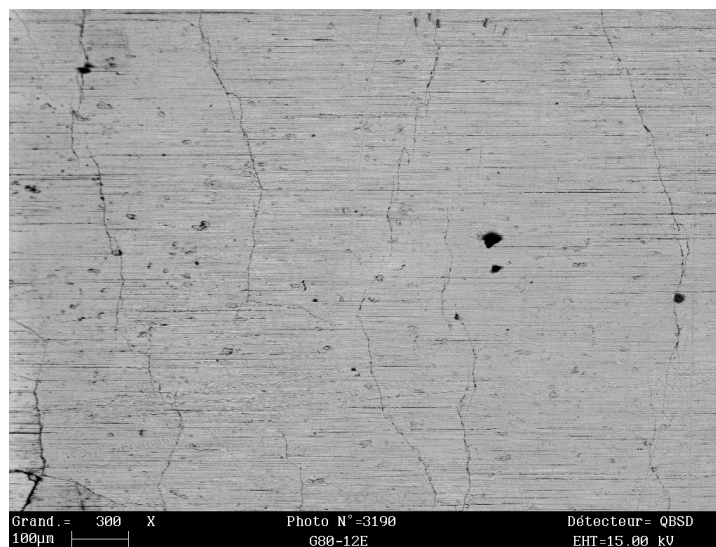


Figure 4-25 : Observation par MEB sur la surface externe de la gaine 10\_1200\_A\_E rompue par l'essai EDC avec  $\epsilon_{00}$  à rupture de 0,012.

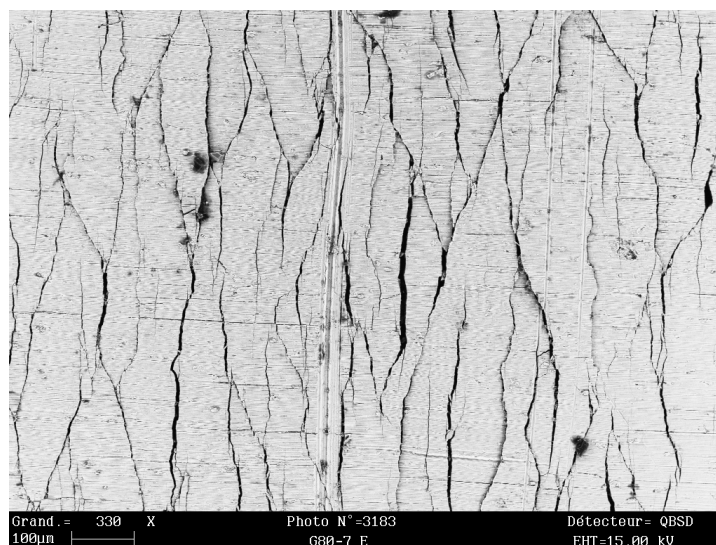


Figure 4-26 : Observation par MEB sur la surface externe de la gaine 6\_1200\_A\_E rompue par l'essai EDC avec  $\epsilon_{00}$  à rupture de 0,055.

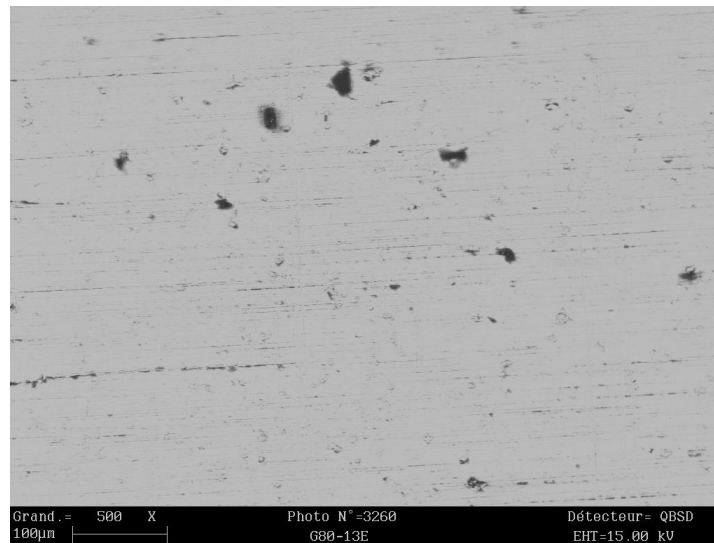


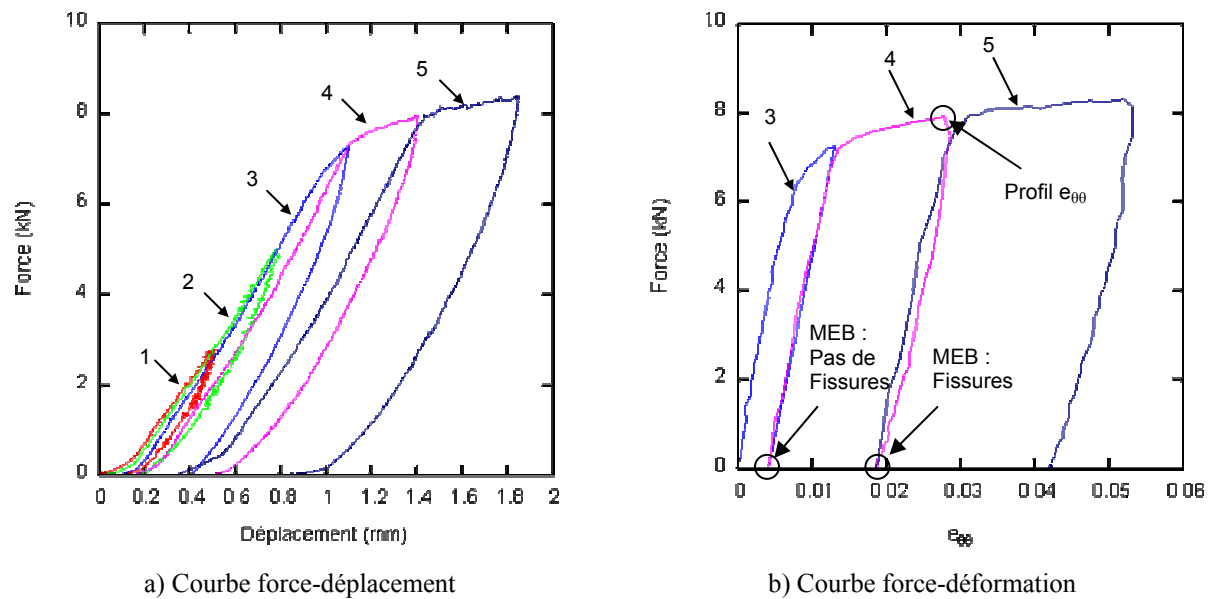
Figure 4-27 : Observation par MEB sur la surface externe de la gaine 17\_1200\_A\_1 rompue par l'essai EDC avec une  $e_{00}$  à rupture de 0,005.

#### Essai EDC « interrompu »

Pour déterminer à quel niveau de déformation circonférentielle commence à fissurer la couche  $ZrO_2$ . Un essai EDC dit « interrompu » est effectué. Dans un essai EDC interrompu, la gaine est chargée en compression avec un faible niveau de déplacement avant d'être déchargée. La gaine déchargée est passée au MEB pour observer la surface externe de la couche  $ZrO_2$ . Ensuite la gaine est rechargée mais avec un niveau de chargement un peu plus élevé avant d'être de nouveau déchargée pour l'observation au MEB. Le cycle de charge et décharge est répété plusieurs fois avec un incrément de chargement chaque fois jusqu'à la rupture de la gaine. Dans un essai interrompu, une moitié de la surface externe de la gaine est recouverte par le mouchetis pour pouvoir mesurer la déformation circonférentielle pendant l'essai, et l'autre moitié non mouchetée permet l'observation au MEB.

La gaine testée par l'essai EDC interrompu est la gaine oxydée à 1100°C avec 6% d'ECR visé puis trempée (tronçon 6\_1100\_T\_F). Le chargement en compression est de 0,5 mm au départ et est incrémenté de 0,25 mm à chaque cycle de chargement. La vitesse de chargement est de  $2,5 \times 10^{-3}$  mm/s.

La Figure 4-28 montre les courbes force-déplacement et force-déformation circonférentielle de l'essai interrompu avec les numéros des chargements. Après le chargement 3, aucune fissure dans la couche  $ZrO_2$  n'est observée. Les premières fissures dans la couche  $ZrO_2$  sont observées à l'issue du chargement 4 (avec un déplacement de 1,25 mm). Les fissures sont observées dans une zone située autour du centre de la zone déformée. La Figure 4-29 montre une corrélation du profil de déformation circonférentielle mesuré par stéréo-corrélation d'images au moment du début du déchargement du chargement 4 et les observations en MEB de l'état déchargé. Les observations montrent qu'à  $e_{00}=0,013$  les premières fissures sont observées.



**Figure 4-28 : Courbes force-déplacement et force-déformation circonférentielle de l'essai interrompu.**

Un seul essai EDC interrompu a été effectué, qui concerne la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 6%. Pour les autres gaines, la déformation circonférentielle pour fissurer la couche  $ZrO_2$  peut être différente. Par exemple, pour la gaine oxydée à 1200°C puis refroidie à l'air avec un ECR visé de 10%, la couche  $ZrO_2$  est déjà multi-fissurée à une déformation circonférentielle de 0,012 (Figure 4-25). Cela implique une déformation circonférentielle plus faible que 0,013 pour fissurer la couche  $ZrO_2$  de cette gaine.



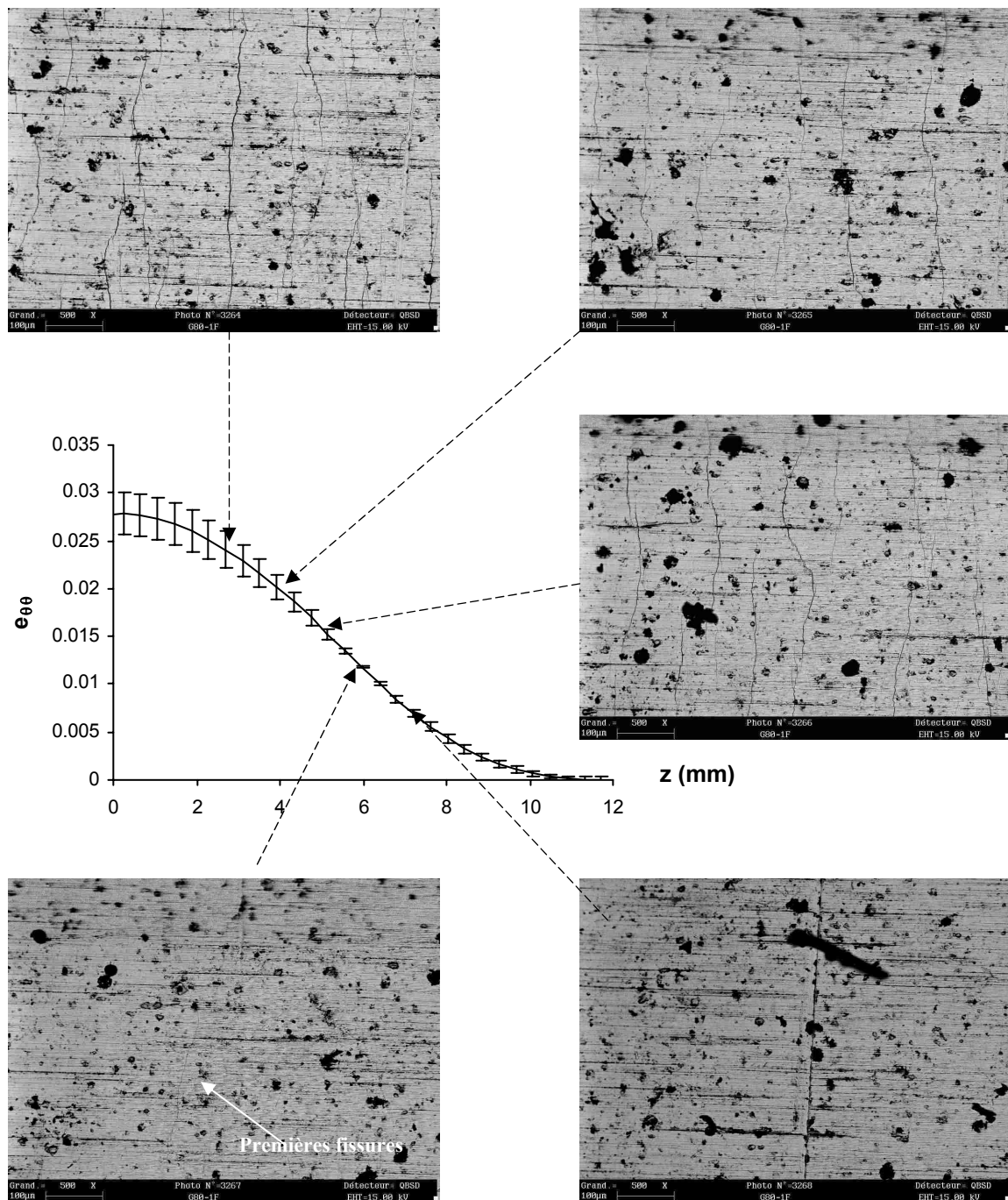


Figure 4-29 : Corrélation du profil de déformation circonférentielle mesuré par stéréo-corrélation d'image et les observations par MEB à l'issue du chargement 4 dans l'essai EDC interrompu.

#### 4.6 Faciès de rupture des gaines oxydées

Les faciès de rupture des gaines oxydées rompues par l'essai EDC sont observés en MEB. Le siège d'observation se situe au milieu de la zone déformée. La Figure 4-30 montre le faciès de rupture de la gaine 10\_1100\_T\_E. La couche  $ZrO_2$  de cette gaine est desquamée lors de la rupture. La couche  $\alpha(O)$  présente un faciès de rupture fragile par

clivage. La matrice de la couche  $\text{ex-}\beta$  présente des cupules, ce qui implique une rupture ductile par cavitation. Cette gaine présente également des incursions  $\alpha(\text{O})$  dans la couche  $\text{ex-}\beta$ , ces incursions présentent un mode de rupture fragile par clivage.

Le mode de rupture ductile par cavitation est également observé sur le faciès de rupture de la gaine 17\_1100\_T\_F qui a un comportement macroscopique fragile (Figure 4-31). Or le faciès de rupture pour cette gaine présente une grande proportion d'incursions  $\alpha(\text{O})$  qui rompent de manière fragile.

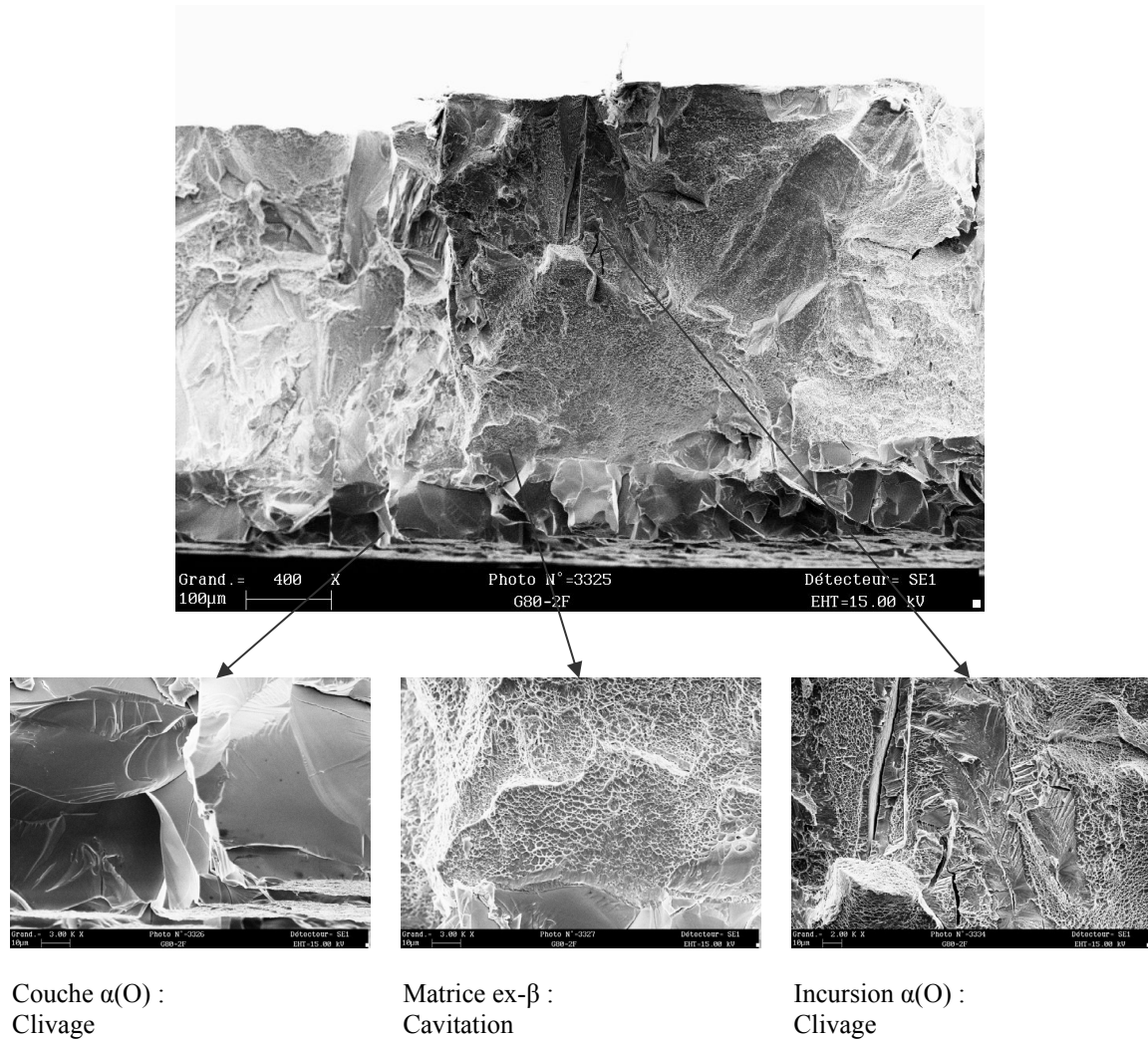
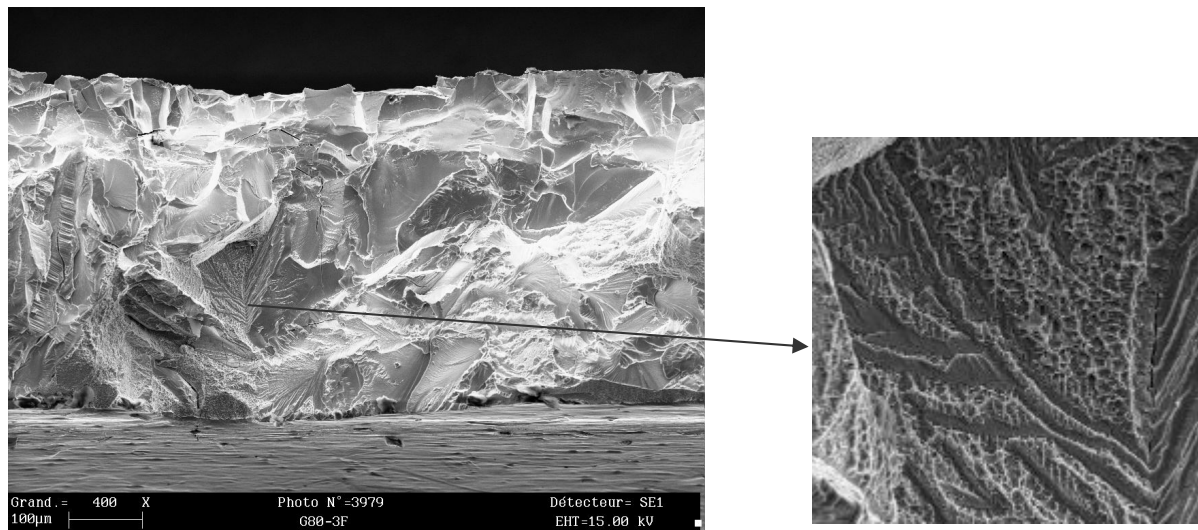


Figure 4-30 : Faciès de rupture de la gaine 10\_1100\_T\_E rompue avec  $\epsilon_{00}=0,01$ .



**Figure 4-31 : Faciès de rupture de la gaine 17\_1100\_T\_F qui a un comportement macroscopique fragile.**

La matrice de la couche ex- $\beta$  des différentes gaines trempées montre différents faciès de rupture (Figure 4-32).

On constate que le faciès de la gaine 10\_1100\_T\_E (Figure 4-32a) montre une rupture plus ductile que celui de la gaine 6\_1200\_T\_F (Figure 4-32b), ce qui peut être expliqué par une plus faible teneur en oxygène de la matrice de la couche ex- $\beta$  de la gaine 10\_1100\_T\_E. Cela confirme la fragilisation de la couche ex- $\beta$  due à l'augmentation de sa teneur en oxygène. Cependant la ductilité macroscopique de la gaine 10\_1100\_T\_E est plus faible de celle de la gaine 6\_1200\_T\_F, ce qui est dû à la présence des incursions  $\alpha(O)$  dans la gaine 10\_1100\_T\_E.

Le faciès de la gaine 17\_1200\_T\_F, dont la teneur en oxygène moyenne mesurée est proche de celle de la gaine 6\_1200\_T\_F, présente un mode rupture plus fragile. Comme il y a une dispersion de teneur en oxygène dans la matrice de la couche ex- $\beta$ , le faciès de la gaine 17\_1200\_T\_F peut correspondre à une zone relativement riche en oxygène.

Il semble y avoir une corrélation entre le mode de rupture et la nano-dureté de la matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines trempées. Plus la nano-dureté est élevée, plus le mode de rupture est fragile (Figure 4-32).

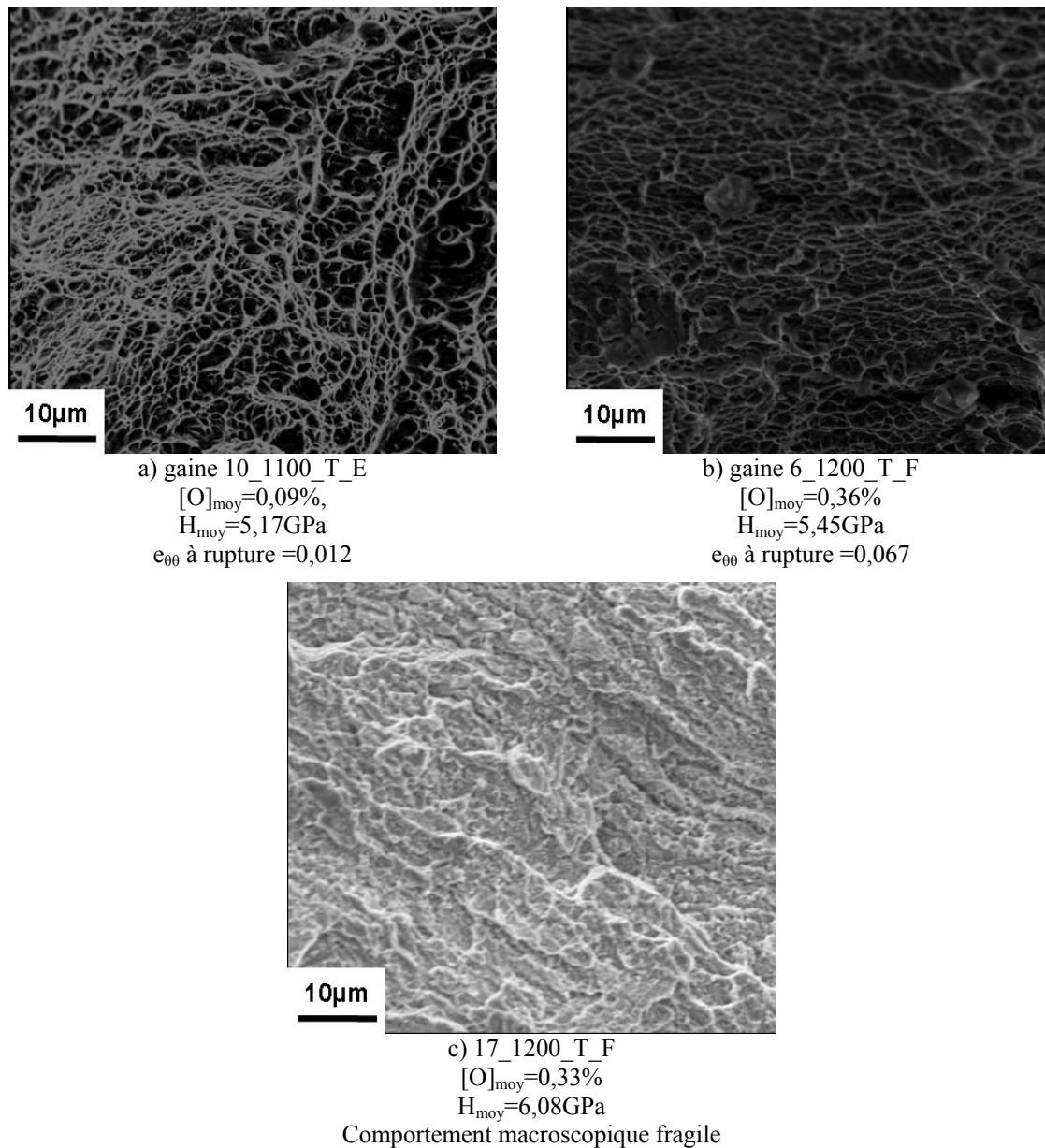


Figure 4-32 : Faciès de rupture de la matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines trempées.

La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air présente une structure à lamelles. Cette structure à lamelles est également observée sur le faciès de rupture de la gaine 10\_1100\_A\_F (Figure 4-33). Cependant un faciès de rupture différent a été observé dans la matrice de la couche ex- $\beta$  d'une gaine refroidie à l'air (Figure 4-34). La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air peut avoir différentes microstructures.

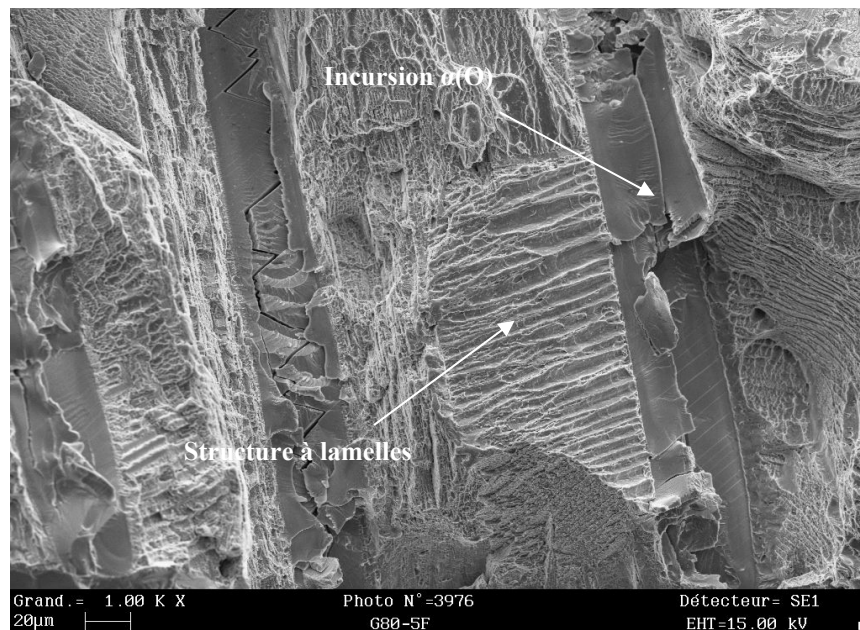


Figure 4-33 : Faciès de rupture de la gaine 10\_1100\_A\_F.

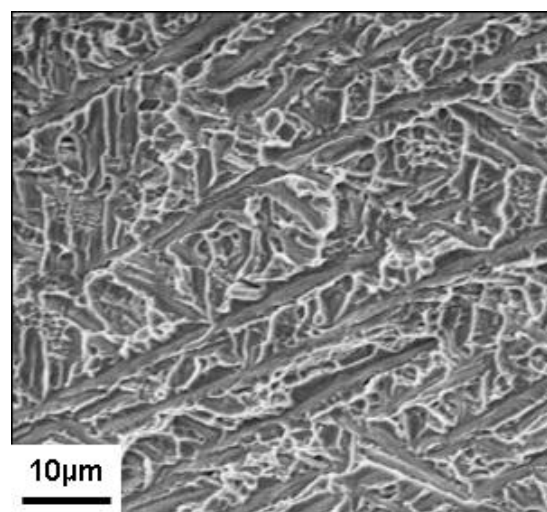


Figure 4-34 : Faciès de rupture de la couche ex- $\beta$  de la gaine 10\_1200\_A\_F.

## 4.7 Conclusion

Le comportement mécanique des gaines oxydées est caractérisé par essais EDC. L'influence des paramètres d'oxydation tels que le niveau d'oxydation, la température d'oxydation et le scénario de refroidissement a été étudiée. Les courbes macroscopiques de l'essai EDC montrent que l'augmentation du niveau d'oxydation fragilise les gaines oxydées et durcit le comportement des gaines oxydées qui présentent une étape de chargement plastique dans l'essai EDC. L'augmentation de la température d'oxydation a un effet durcissant sur le comportement des gaines oxydées. La trempe a un effet durcissant par rapport au refroidissement à l'air.

La ductilité des gaines oxydées est caractérisée par leur déformation circonférentielle à rupture lors de l'essai. L'évolution de la ductilité met en évidence la fragilisation par l'augmentation du niveau d'oxydation. Les gaines oxydées à 1200°C puis trempées avec un ECR réel de l'ordre de 7% présentent une dispersion de la ductilité et des ductilités plus faibles que celles des gaines oxydées à 1200°C puis trempées avec un ECR réel proche.

La transition ductile-fragile est définie par un seuil de déformation circonférentielle à rupture de 1%, qui correspond à la déformation circonférentielle pour laquelle les courbes de l'essai EDC commencent à présenter un comportement non linéaire. La transition ductile-fragile a lieu pour un ECR réel de l'ordre de 12%.

Les essais EDC effectués sur les gaines oxydées puis sablées montrent que la ductilité des gaines oxydées est déterminée par leur couche ex- $\beta$  et que l'existence des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  augmente le niveau de force du chargement plastique de l'essai EDC.

La fragilisation par l'augmentation du niveau d'oxydation est due à la prise d'oxygène de la couche ex- $\beta$ , qui augmente la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$  ou forme les incursions  $\alpha(O)$ . Pour les gaines trempées avec un ECR réel de l'ordre de 7%, l'augmentation de la température d'oxydation augmente la dispersion de la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$ , ce qui durcit et fragilise localement la couche ex- $\beta$ . Cela entraîne un niveau de force du chargement plastique plus élevé et des ductilités plus faibles.

La microstructure à lamelle de la couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air entraîne un comportement de la couche ex- $\beta$  moins dur.

Les gaines oxydées rompent dans l'essai EDC par une fissuration axiale. Les gaines trempées avec un ECR visé supérieur à 10% rompent avec une desquamation totale de la couche  $ZrO_2$ . Les gaines dont la ductilité est élevée ont une desquamation de la couche  $ZrO_2$  dans la zone de transition à cause de la forte compression dans la couche  $ZrO_2$  engendrée par l'effet de flexion axiale. Les gaines ductiles peuvent avoir une fissuration axiale arrêtée.

L'observation des sections des gaines rompues et des faciès de rupture montre que la matrice de la couche ex- $\beta$  des gaines trempées rompt de manière ductile et les incursions  $\alpha(O)$  fragile. Le faciès de rupture de la couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air est moins régulier, ce qui est lié à sa structure à lamelles.

La couche  $\alpha(O)$  qui est déjà multifissurée avant l'essai EDC peut connaître une densification des multifissures avec des déformations circonférentielles élevées.

La couche  $ZrO_2$  se multifissure au cours de l'essai EDC. Un essai EDC interrompu effectué montre que la couche  $ZrO_2$  commence à fissurer avec une déformation circonférentielle de 0,013 dans le cas de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 6%.

## 5 Modélisation et Simulation de l'essai EDC

### 5.1 Description de la modélisation de l'essai EDC

Cette section détaille la modélisation géométrique de l'essai EDC, la modélisation des comportements du piston et du pion et la modélisation du contact avec frottement. La modélisation du comportement de la gaine sera présentée dans les sections 5.2 - 5.4.

#### 5.1.1 Modélisation géométrique

Une modélisation géométrique axisymétrique est utilisée pour simuler l'essai EDC. De plus la symétrie par rapport au plan médian est considérée. Un demi de la géométrie est donc modélisé.

Le piston a pour rôle d'effectuer une compression par contact sur le pion. Comme le piston est en Inconel X-750 qui est plus dur que le Téflon, la déformation du piston dans un essai EDC est très faible, seule la partie du piston qui est en contact avec le pion est modélisée. Le piston est ainsi modélisé par un cylindre.

La Figure 5-1 montre la modélisation géométrique de l'essai EDC. Les dimensions de la modélisation géométrique sont :  $l_{piston}=5$  mm,  $r_{piston}=4,15$  mm,  $l_{pion}=6,25$  mm,  $l_{gaine}=12,5$  mm. Le rayon du pion  $r_{pion}$ , le rayon interne et l'épaisseur de la gaine dépendent des essais EDC effectués. Le jeu initial pion/gaine est égal à la différence entre le rayon du pion et le rayon interne de la gaine. Le contact pion/piston et le contact pion/gaine sont considérés dans la modélisation.

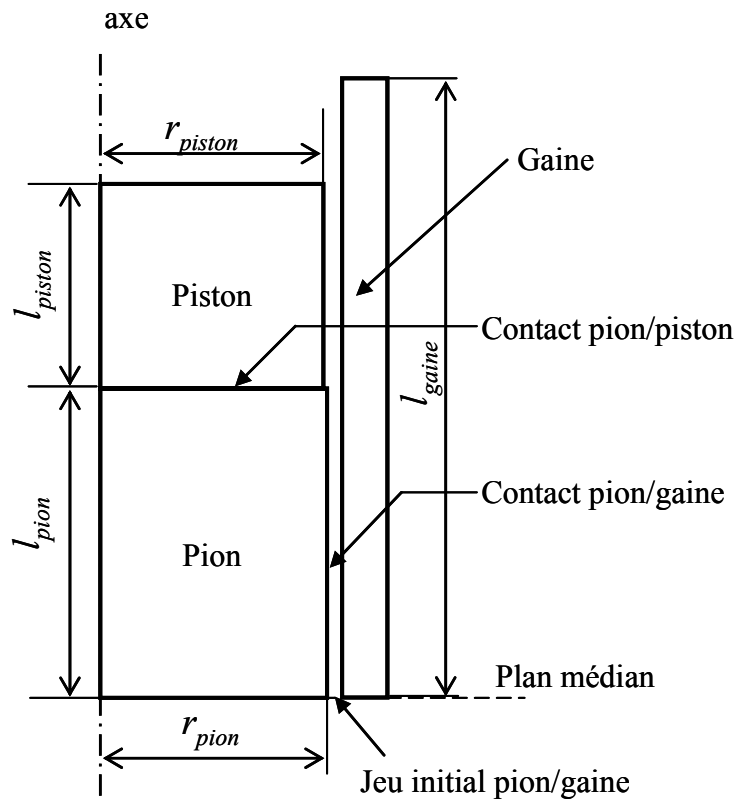


Figure 5-1 : Modélisation géométrique de l'essai EDC

### 5.1.2 Modélisation des comportements du piston et du pion

#### Piston

Le matériau du piston, en Inconel X-750, est considéré purement élastique avec  $E=200$  GPa et  $\nu=0,3$ .

#### Pion

Le comportement du pion en Téflon est caractérisé par l'essai de compression avec les pistons pour l'essai EDC (Annexe E). Le dépouillement donne une modélisation élasto-plastique avec le module d'Young  $E=593$  MPa, le coefficient de Poisson  $\nu=0,47$ , et avec un écrouissage isotrope linéaire avec la limite d'élasticité  $\sigma_y=9,37$  MPa et le module d'écrouissage  $H=50,95$  MPa. Cette modélisation est utilisée dans ce chapitre.

### 5.1.3 Modélisation du contact avec frottement

Le contact pion/piston et le contact pion/gaine sont modélisés par un modèle de contact dur (l'interpénétration des surfaces en contact non autorisée). Le frottement est pris en compte par le modèle de Coulomb :

$$k = \mu \cdot p ,$$

où  $k$  est la composante tangente de l'effort de contact,  $p$  la pression de contact, et  $\mu$  le coefficient de frottement.



Le coefficient de frottement pion/piston est noté  $\mu_{pp}$  et celui du frottement pion/gaine  $\mu_{pg}$ .

## 5.2 Détermination des paramètres de modélisation

Les modélisations du contact et des comportements du piston et du pion présentent plusieurs paramètres. Parmi ces paramètres de modélisation, les coefficients de frottement  $\mu_{pp}$  et  $\mu_{pg}$  sont inconnus. Les paramètres dans les modélisations du comportement du pion peuvent présenter des erreurs qui pourraient influencer les résultats de la simulation de l'essai EDC. Il est nécessaire de déterminer et de valider les paramètres de modélisation.

On dispose d'un essai EDC sur une gaine en Zircaloy-4 vierge (état de réception) dont le comportement a été caractérisé par un essai sous pression interne. Les résultats de l'essai EDC sur la gaine vierge sont présentés par la courbe force-déplacement et la courbe force-déformation. L'objectif est de déterminer les paramètres de modélisation en simulant la courbe force-déplacement et la courbe force-déformation de l'essai EDC sur la gaine vierge.

### 5.2.1 Simulation de l'essai EDC sur la gaine vierge

Seule l'étape de montée élastique de l'essai EDC sur gaine vierge est utilisée pour déterminer les paramètres de modélisation, le comportement de la gaine vierge en Zircaloy-4 prend donc une modélisation élastique isotrope avec le module d'Young  $E=97$  GPa et  $\nu=0,37$  qui sont des valeurs classiques pour les alliages de zirconium.

Dans la simulation, le pion a un rayon de 4,15 mm, la gaine a un rayon interne de 4,18 mm et une épaisseur de 0,57 mm. Le jeu initial gaine/pion est donc de 0,03 mm.

Le maillage est constitué d'éléments quadrangles linéaires ; les conditions aux limites liées aux symétries sont imposées ; la compression est appliquée sur la surface supérieure du piston en imposant un déplacement axial (Figure 5-2). La simulation est effectuée en utilisant le Code\_Aster® version 11.1.

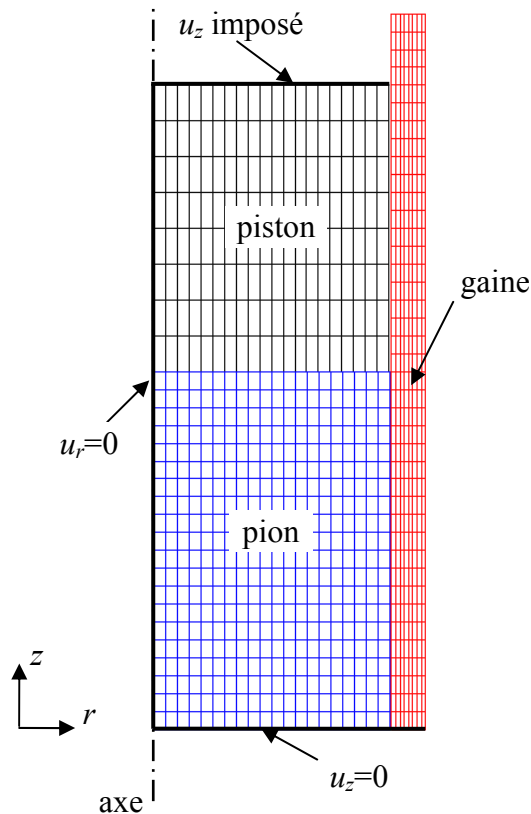


Figure 5-2 : Maillage et conditions aux limites de la simulation de l'essai EDC sur la gaine vierge.

### 5.2.2 Sensibilité des paramètres de modélisation

Avant de déterminer les paramètres, la sensibilité des paramètres sur les courbes force-déplacement et force-déformation est étudiée. Les paramètres étudiés sont  $E$ ,  $\nu$ ,  $\sigma_y$  et  $H$  de la modélisation du comportement du pion, et les coefficients de frottement  $\mu_{pp}$  et  $\mu_{pg}$ . Un ensemble de valeurs de référence pour les paramètres est choisi et présenté dans le Tableau 5-1. Les valeurs de référence pour le comportement du pion sont celles issues de l'essai de compression sur le pion (cf. section 5.1.2). Les coefficients de frottement prennent une valeur de 0,1 car le frottement du Téflon est faible.

Tableau 5-1 : Valeur de référence des paramètres de modélisation

Paramètre	Valeur
$E$	593 MPa
$\nu$	0,47
$\sigma_y$	9,37 MPa
$H$	50,95 MPa
$\mu_{pp}$	0,1
$\mu_{pg}$	0,1

La sensibilité d'un paramètre est étudiée séparément en faisant varier le paramètre en question et en gardant fixes les valeurs de référence pour les autres paramètres. Les sensibilités des paramètres sur les deux courbes sont présentées sur les Figures 5-3 à 5-8. Le coefficient de frottement  $\mu_{pp}$  n'a pas d'influence sur les deux courbes, le choix de sa valeur peut être arbitraire, dans la suite  $\mu_{pp}=0$  sera utilisé. Les paramètres  $E$ ,  $\sigma_y$  et  $H$  n'ont qu'une faible influence sur les deux courbes et prendront donc les valeurs mesurées. La courbe force-déplacement est très sensible à la variation du coefficient de Poisson  $\nu$  du pion. Une petite erreur dans la mesure peut entraîner une erreur importante sur la simulation.  $\nu$  et  $\mu_{pg}$  seront déterminés par l'essai EDC sur la gaine vierge.

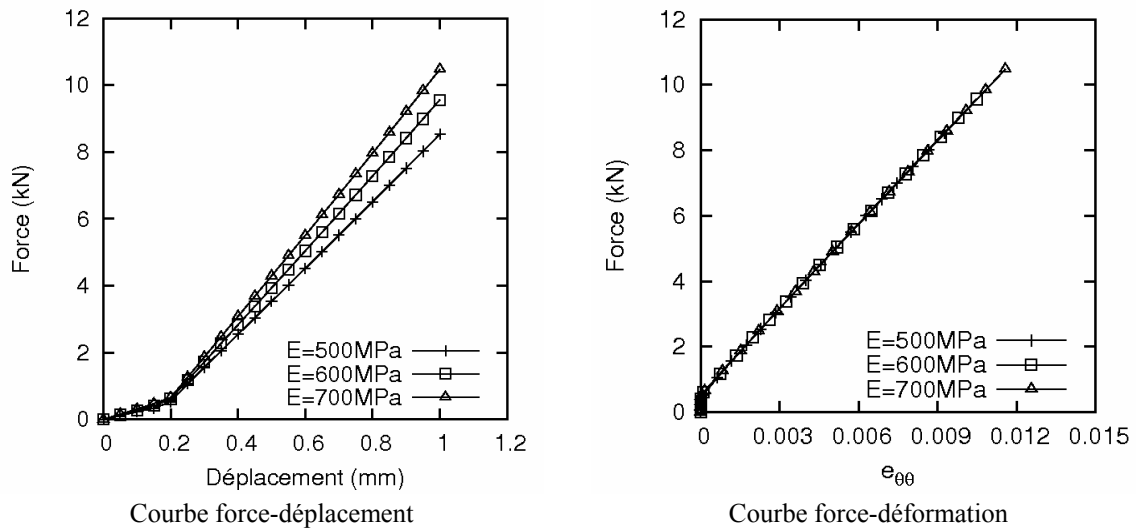


Figure 5-3 : Influence du module d'Young du pion  $E$

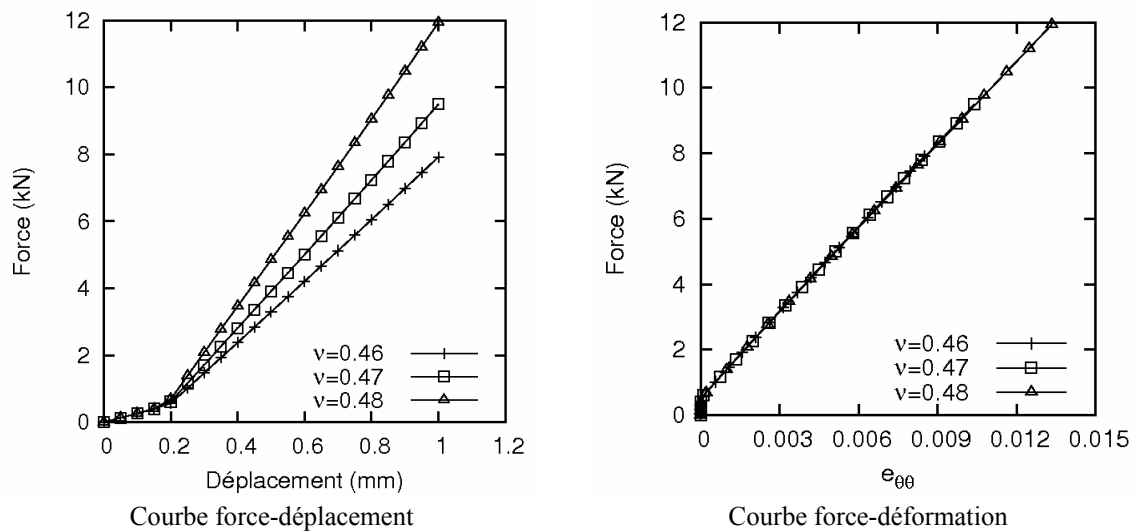


Figure 5-4 : Influence du coefficient de Poisson du pion  $\nu$

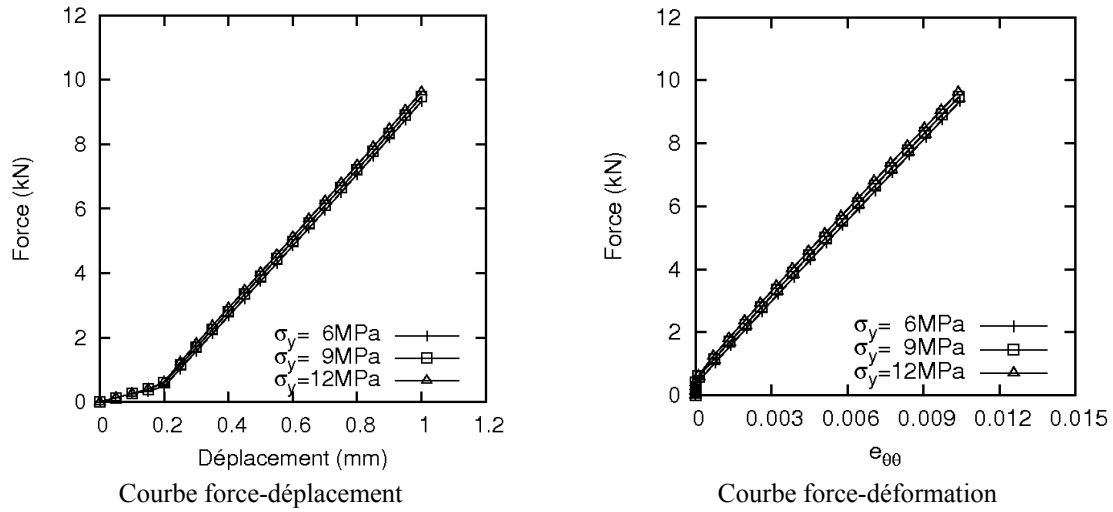


Figure 5-5 : Influence de la limite d'élasticité du pion  $\sigma_y$

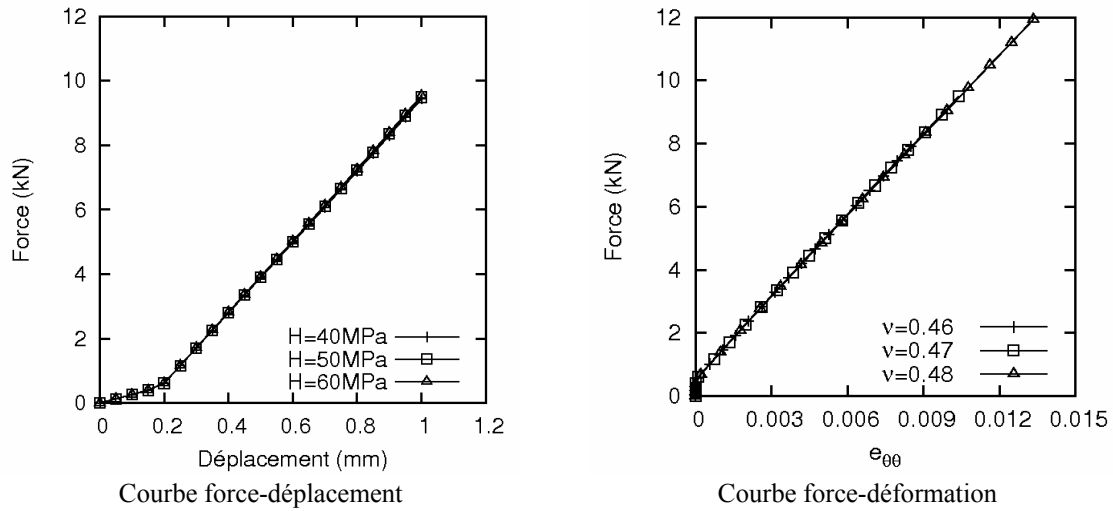


Figure 5-6 : Influence du module d'écrouissage du pion  $H$

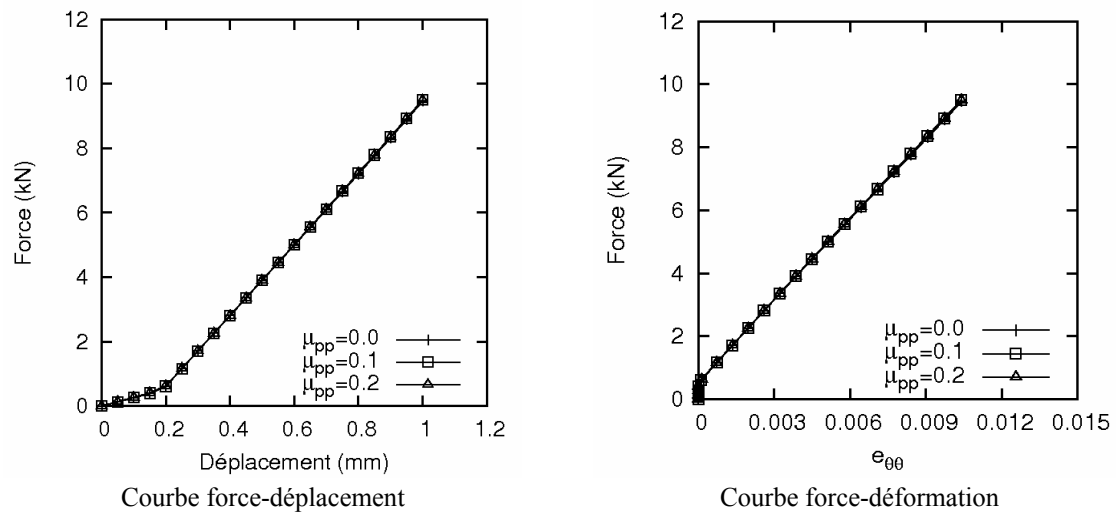
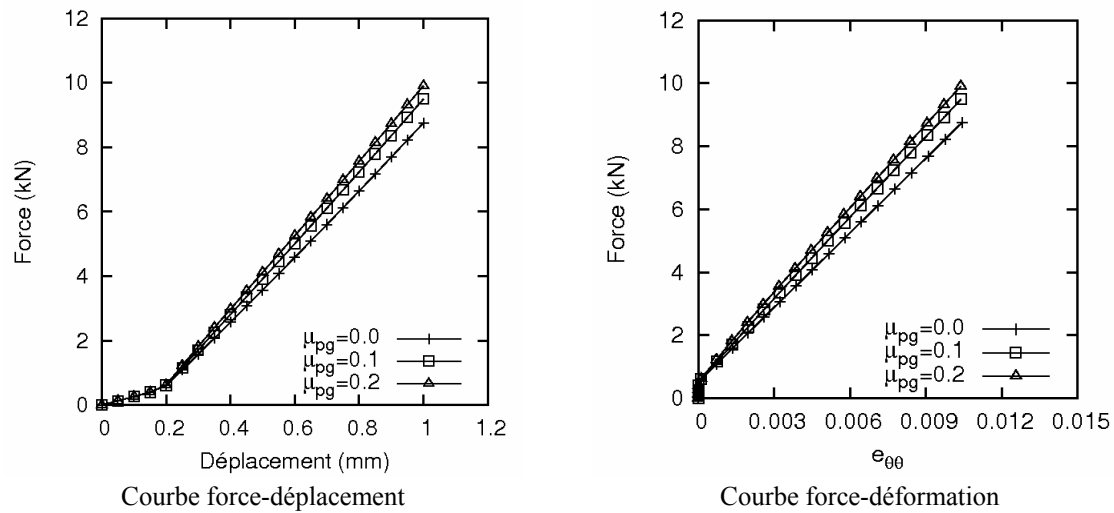
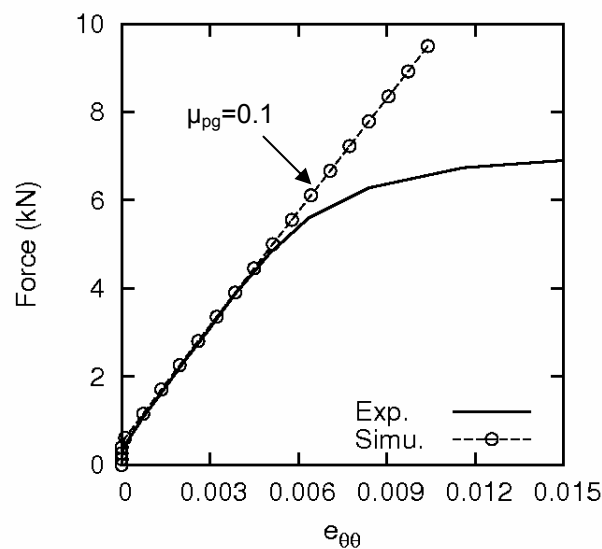


Figure 5-7 : Influence du coefficient de frottement piston/piston  $\mu_{pp}$

Figure 5-8 : Influence du coefficient de frottement pion/gaine  $\mu_{pg}$ 

### 5.2.3 Détermination de $\nu$ et $\mu_{pg}$

Les paramètres dont la valeur est à déterminer sont le coefficient de Poisson  $\nu$  du Téflon et le coefficient de frottement pion/gaine  $\mu_{pg}$ . Comme  $\nu$  n'a pas d'influence sur la courbe force/ $e_{\theta\theta}$  (Figure 5-5),  $\mu_{pg}$  est tout d'abord déterminé par recalage à partir des courbes force/ $e_{\theta\theta}$  de l'essai EDC sur gaine vierge (Figure 5-9). Le recalage donne  $\mu_{pg}=0,1$ . Ensuite,  $\nu$  est recalé à partir de la courbe force-déplacement corrigée (Figure 5-10). Le recalage donne  $\nu=0,47$ . Les valeurs des paramètres de modélisation retenues sont présentées dans le Tableau 5-2.

Figure 5-9 : Recalage de  $\mu_{pg}$

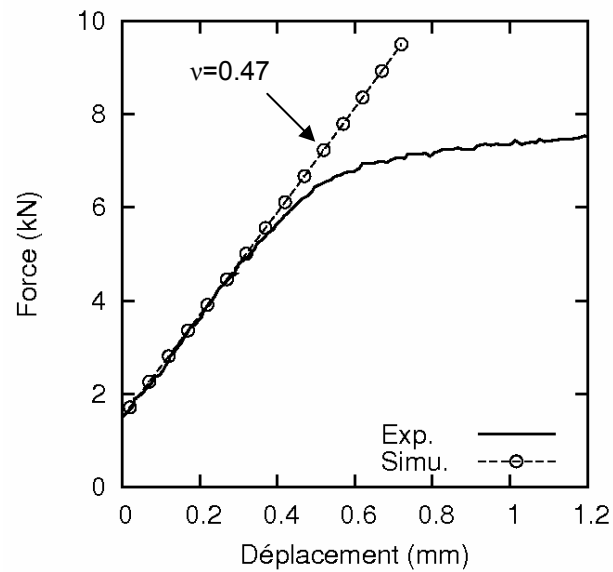
Figure 5-10 : Recalage de  $\nu$ 

Tableau 5-2 : Valeur retenue des paramètres de modélisation

Paramètre	Valeur
E	593 MPa
$\nu$	0,47
$\sigma_y$	9,37 MPa
H	50,95 MPa
$\mu_{pp}$	0
$\mu_{pg}$	0,1

La simulation avec les paramètres de modélisation retenus permet de reproduire le profil axial de la déformation circonférentielle de la gaine vierge pendant l'essai EDC (Figure 5-11).

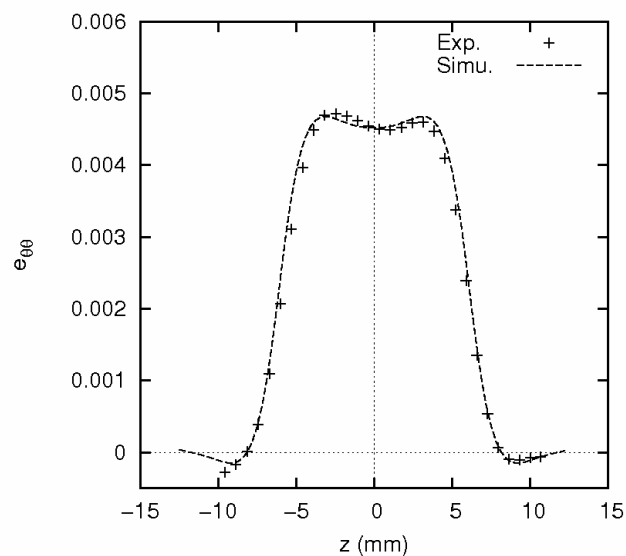


Figure 5-11 : Profil axial de la déformation circonférentielle développée pendant l'essai EDC sur la gaine vierge à une déformation circonférentielle de 0,0045.

### 5.3 Simulation de l'essai EDC sur gaine vierge

Dans cette section l'essai EDC sur une gaine vierge en Zircaloy-4 détendu est simulé avec une modélisation élasto-plastique isotrope du comportement de la gaine. La gaine en Zircaloy-4 détendu a un comportement plastique anisotrope (Delobelle et al 1996, Schaeffer 1997, Doan 2009). L'anisotropie est due à la structure cristalline hexagonale compacte de la phase  $\alpha$ -Zr et à la texture cristallographique de la gaine. Une modélisation élasto-plastique isotrope ne permet pas de reproduire l'essai EDC sur la gaine vierge en Zircaloy-4 détendu. Cependant elle permet de déterminer l'état de contrainte et de déformation d'un matériau élasto-plastique à différentes étapes (montée élastique et chargement plastique) de l'essai EDC.

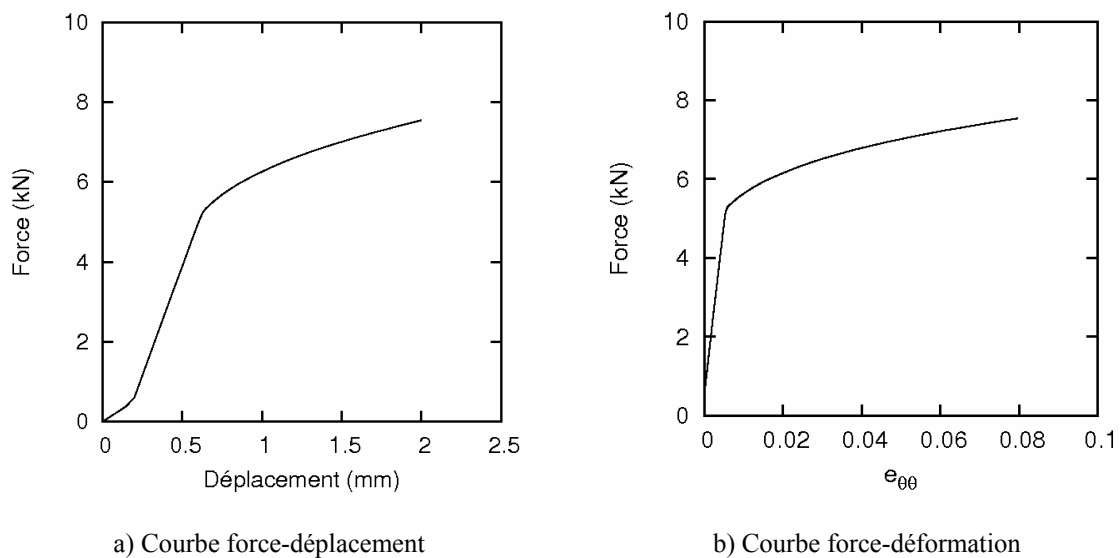
#### 5.3.1 Modélisation élasto-plastique du comportement de la gaine

Le comportement de la gaine vierge est modélisé par un comportement élasto-plastique avec  $E=97$  GPa,  $\nu=0,37$  et l'écrouissage isotrope utilisé par Dufourneaud et al [DUFO02] :

$$R(p) = \sigma_y \left( 1 + \frac{p}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{n}}$$

où  $\varepsilon_0 = \sigma_y / E$ .  $\sigma_y=600$  MPa,  $n=7,76$ .

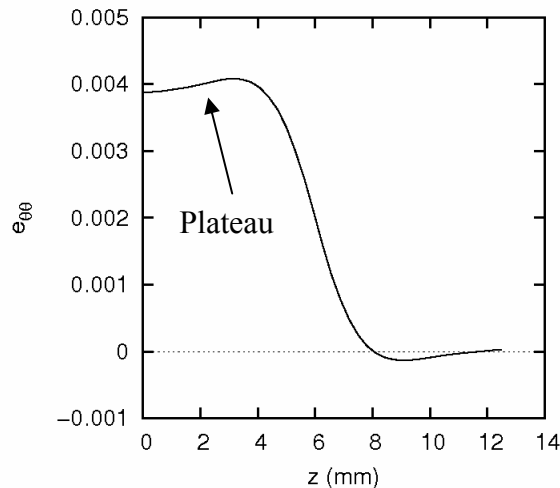
La Figure 5-12 montre la courbe force-déplacement et la courbe force-déformation de la simulation. Les courbes simulées présentent bien les trois étapes : le rattrapage de jeu initial pion/gaine, la montée élastique et le chargement plastique. Dans la suite, les états de contrainte et déformation de la gaine dans l'étape de montée élastique et dans l'étape de chargement plastique seront présentés.



**Figure 5-12 : Courbes force-déplacement et force-déformation de la simulation de l'essai EDC sur gaine vierge.**

### 5.3.2 Montée élastique

La Figure 5-13 présente la distribution axiale de la déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  sur la peau externe pendant l'essai EDC avec un déplacement de compression de 0,5 mm où la gaine se trouve dans la phase de montée élastique. La distribution de  $e_{\theta\theta}$  présente un plateau avec le maximum à 4 mm du plan médian. La déformation circonférentielle au plan médian ( $z=0$ ) est légèrement inférieure au maximum.



**Figure 5-13 : Distribution axiale de la déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  sur la surface extérieure avec un déplacement de compression de 0,5 mm.**

La Figure 5-14 montre les champs de contrainte  $\sigma_{rr}$ ,  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  dans la gaine pendant l'essai EDC pour un déplacement de compression de 0,5 mm. Le contact avec le pion entraîne une compression radiale ( $\sigma_{rr}$  négative) à la surface intérieure de la gaine. La compression radiale présente un gradient diminuant à travers l'épaisseur et tend vers 0 à l'extérieur de la gaine (Figure 5-14a).

Le contact avec le pion déforme la gaine, dans la partie déformée de la gaine la contrainte circonférentielle est la contrainte la plus importante. Dans une zone autour du plan médian de la gaine, la contrainte circonférentielle est assez homogène. Le maximum de la contrainte circonférentielle se trouve en peau interne de la gaine (Figure 5-14b). En peau interne la distribution axiale de  $\sigma_{\theta\theta}$  présente un plateau autour du plan médian (Figure 5-15). A cause de l'axisymétrie, la direction circonférentielle est une direction principale, la contrainte circonférentielle est donc la contrainte principale majeure dans la zone déformée.

La contrainte axiale est très faible dans la plupart de la gaine. Cependant dans la partie entre la zone déformée et la zone non déformée il y a deux zones de flexion qui présentent des fortes compression et traction en peau interne et externe (Figure 5-14c).

La Figure 5-14d montre la contrainte équivalente de von Mises  $\sigma_{eq}$ . Le maximum de  $\sigma_{eq}$  se trouve en peau interne. La distribution axiale de  $\sigma_{eq}$  y présente un plateau autour du plan médian (Figure 5-15). Dans la zone déformée, la distribution de  $\sigma_{eq}$  présente un gradient décroissant dans l'épaisseur vers l'extérieur.



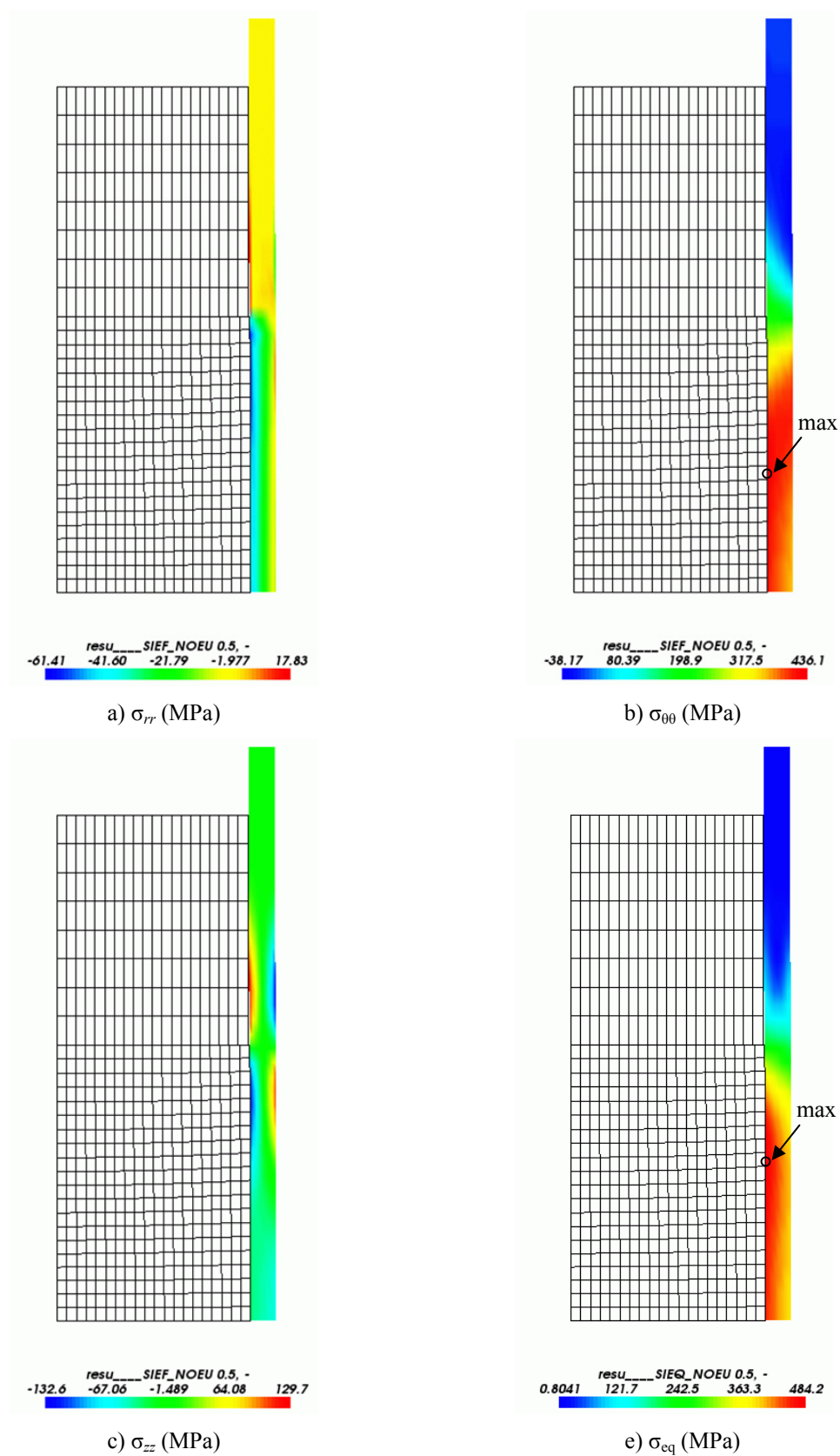


Figure 5-14 : Contraintes dans la gaine pendant l'essai EDC pour un déplacement de compression de 0,5 mm.

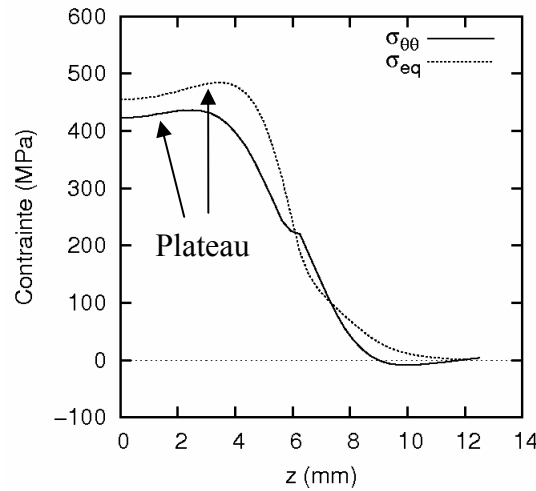


Figure 5-15 : Distribution axiale de la contrainte en peau interne avec un déplacement de compression de 0,5 mm

### 5.3.3 Chargement plastique

La Figure 5-16 présente la distribution axiale de la déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  en peau externe pendant l'essai EDC avec un déplacement de compression de 1 mm où la gaine se trouve dans la phase de chargement plastique. La distribution de  $e_{\theta\theta}$  présente une forme de tonneau avec un pic au plan médian.

Avec un déplacement de compression de 1 mm, la contrainte circonférentielle maximale se trouve en peau externe (Figure 5-17a). Il n'y a qu'une zone de flexion avec une importante compression axiale ( $\sigma_{zz} < 0$ ) en peau externe et une importante traction axiale ( $\sigma_{zz} > 0$ ) en peau interne dans la zone qui lie la partie déformée et la partie non déformée de la gaine (Figure 5-17b). La contrainte équivalente est très homogène dans la zone autour du plan médian et son maximum se trouve au plan médian en peau interne (Figure 5-17c). La déformation équivalente de von Mises  $\epsilon_{eq}$  présente un maximum également au plan médian en peau interne, par contre il y a un gradient plus marqué de  $\epsilon_{eq}$  dans la zone autour du plan médian que celui de  $\sigma_{eq}$  (Figure 5-17d).

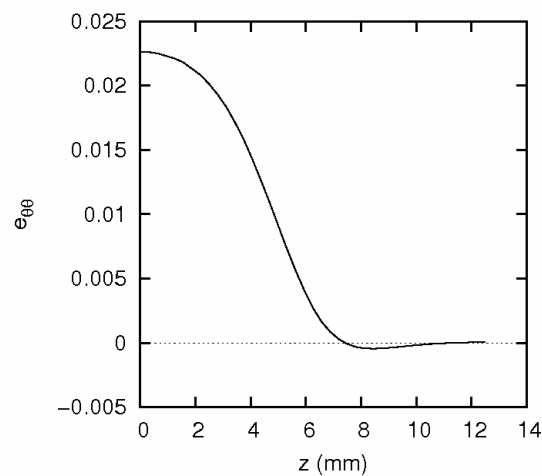


Figure 5-16 : Distribution axiale de la déformation circonférentielle  $e_{\theta\theta}$  en peau externe avec un déplacement de compression de 1 mm.

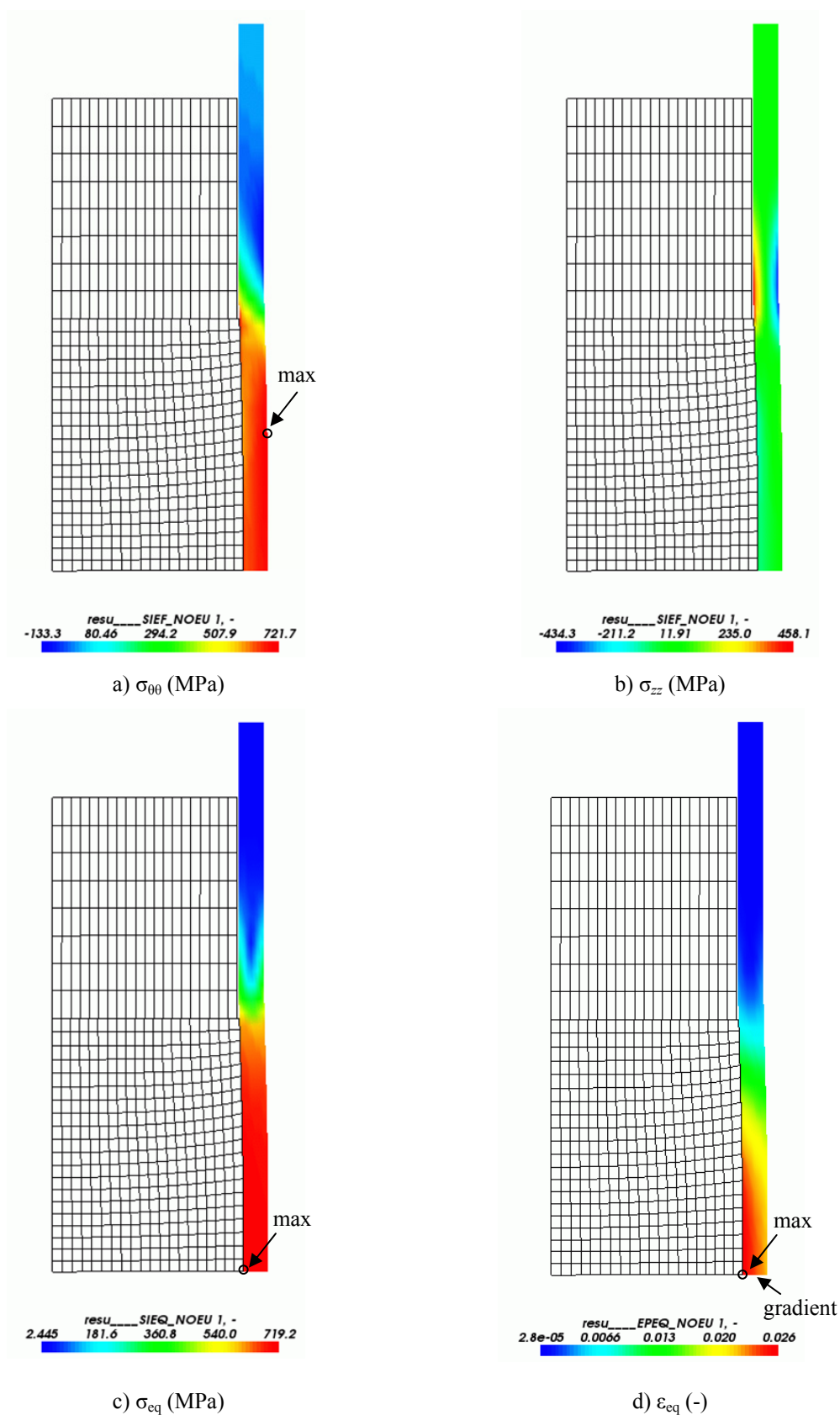


Figure 5-17 : Contraintes et déformation équivalente dans la gaine pendant l'essai EDC pour un déplacement de compression de 1 mm.

## 5.4 Simulation de l'essai EDC sur gaines sablées

L'essai EDC sur gaines sablées est simulé pour caractériser le comportement de la couche ex- $\beta$ . Dans la simulation, les paramètres de simulation de l'essai EDC déterminés dans la section 5.2 sont utilisés.

### 5.4.1 Modélisation géométrique de la couche ex- $\beta$

Dans la simulation, les gaines sablées sont considérées comme comportant uniquement la couche ex- $\beta$ . C'est-à-dire, pour les gaines sablées qui comportent une couche  $\alpha(O)$  restante, la couche  $\alpha(O)$  est négligée. Les essais EDC simulés sur gaines sablées et les épaisseurs des couches retenues ex- $\beta$  dans la simulation sont présentés dans le Tableau 5-3. On notera que pour l'essai EDC sur l'éprouvette 17\_1200\_T\_C\_S la mesure de déformation par corrélation d'images n'est pas disponible.

**Tableau 5-3 : Simulation de l'essai EDC sur gaines sablées.**

Gaine	Eprouvette	Epaisseur ex- $\beta$ ( $\mu\text{m}$ )	Modélisation ex- $\beta$
6% 1100°C trempée	6_1100_T_C_S	475	élasto-plastique
10% 1100°C trempée	10_1100_T_C_S	400	élasto-plastique
	10_1100_T_B_S	440	
17% 1100°C trempée	17_1100_T_C_S	360	élastique
6% 1100°C à l'air	6_1100_A_C_S	500	élasto-plastique
10% 1100°C à l'air	10_1100_A_C_S	395	élasto-plastique
17% 1100°C à l'air	17_1100_A_C_S	365	élastique
6% 1200°C trempée	6_1200_T_C_S	500	élasto-plastique
10% 1200°C trempée	10_1200_T_C_S	380	élasto-plastique
	10_1200_T_A_S	440	
17% 1200°C trempée	17_1200_T_C_S	350	élastique
6% 1200°C à l'air	6_1200_A_C_S	500	élasto-plastique
10% 1200°C à l'air	10_1200_A_C_S	440	élasto-plastique
17% 1200°C à l'air	17_1200_A_C_S	350	élastique

### 5.4.2 Modélisation du comportement de la couche ex- $\beta$

La couche ex- $\beta$  est considérée homogène. Les gaines sablées avec un ECR visé de 17% rompent dans la phase de montée élastique, une modélisation élastique de la couche ex- $\beta$  est utilisée pour ces gaines (Tableau 5-3).

Pour les gaines avec des ECR visés de 6% et de 10% qui rompent dans la phase de chargement plastique, une modélisation élasto-plastique avec écrouissage isotrope de la couche ex- $\beta$  est utilisée (Tableau 5-3). Il n'y a pas d'élément qui justifie que la plasticité de la couche ex- $\beta$  soit isotrope. Cependant Romero [ROME10] a montré que la plupart des phases  $\beta$  trempées du Zircaloy (le Zircaloy ayant subi une trempe à partir d'une température au dessus de la température de transformation  $\alpha$ - $\beta$ ) présentent une texture

moins prononcée. Une modélisation élasto-plastique isotrope peut donc être une bonne approximation.

Un même module d'Young  $E=100$  GPa pour toutes les gaines est utilisé comme décrit dans la section 2.4.5. Il y a très peu de données disponibles sur le coefficient de Poisson de la phase ex- $\beta$  dans la bibliographie, le coefficient de Poisson  $\nu=0,35$  de la phase ex- $\beta$  proposé par Stern [STER07] est utilisé pour toutes les gaines sablées.

Pour les gaines dont la modélisation du comportement est élasto-plastique, l'écroutissement isotrope est décrit par une loi non linéaire de forme :

$$R(p) = \sigma_y + Q \cdot [1 - \exp(-bp)]$$

On dispose des courbes force-déplacement et force-déformation expérimentales de l'essai EDC. Les paramètres  $\sigma_y$ ,  $Q$  et  $b$  sont recalés à partir de l'étape de chargement plastique de la courbe force-déformation pour chaque condition d'oxydation. En effet, la déformation circonférentielle mesurée est une quantité propre à la gaine, tandis que le déplacement est une quantité globale du système. Le recalage du comportement à partir d'une quantité propre à la gaine est plus pertinent pour déterminer les paramètres de la modélisation.

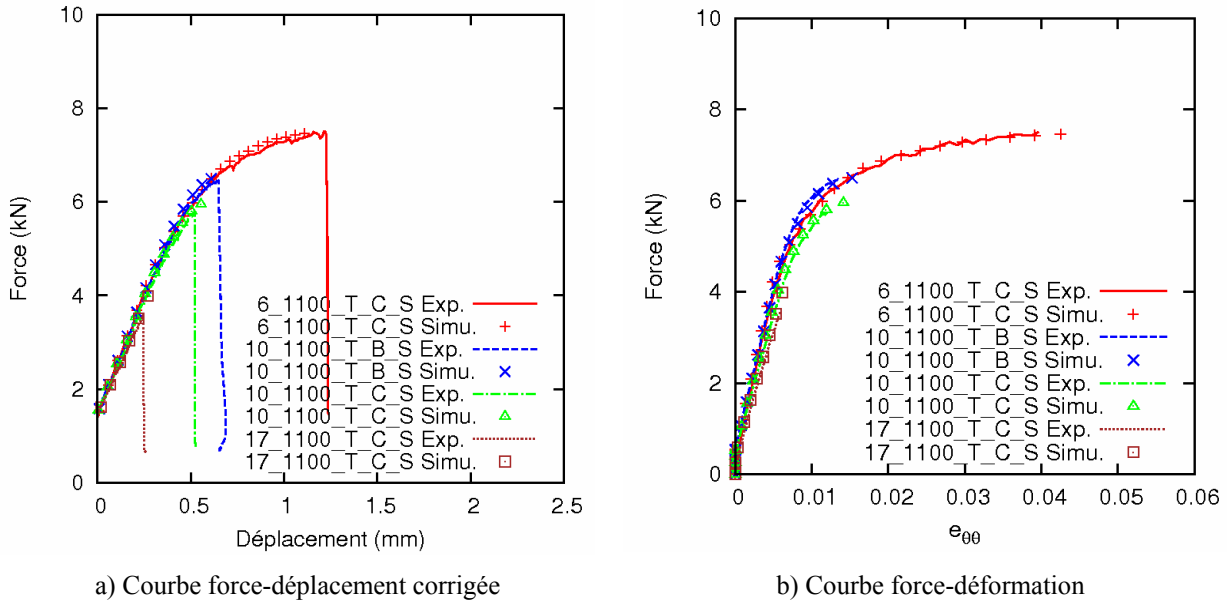
Le recalage utilise l'algorithme de Levenberg-Marquardt et est effectué en utilisant la commande MACR\_RECAL de Code\_Aster®. Les paramètres  $\sigma_y$ ,  $Q$  et  $b$  recalés pour chaque condition d'oxydation sont présentés dans le Tableau 5-4. Pour comparer le comportement de la couche ex- $\beta$  des différentes gaines, il faut utiliser la relation  $R(p)$  (ou la relation  $\sigma(\epsilon)$  du comportement élasto-plastique). L'étude directe de l'évolution des paramètres  $\sigma_y$ ,  $Q$  et  $b$  avec les conditions d'oxydation n'est pas pertinente dans la mesure où ces paramètres peuvent avoir des influences croisées sur la courbe d'écroutissement.

**Tableau 5-4 : Paramètres d'écroutissement recalés pour chaque condition d'oxydation.**

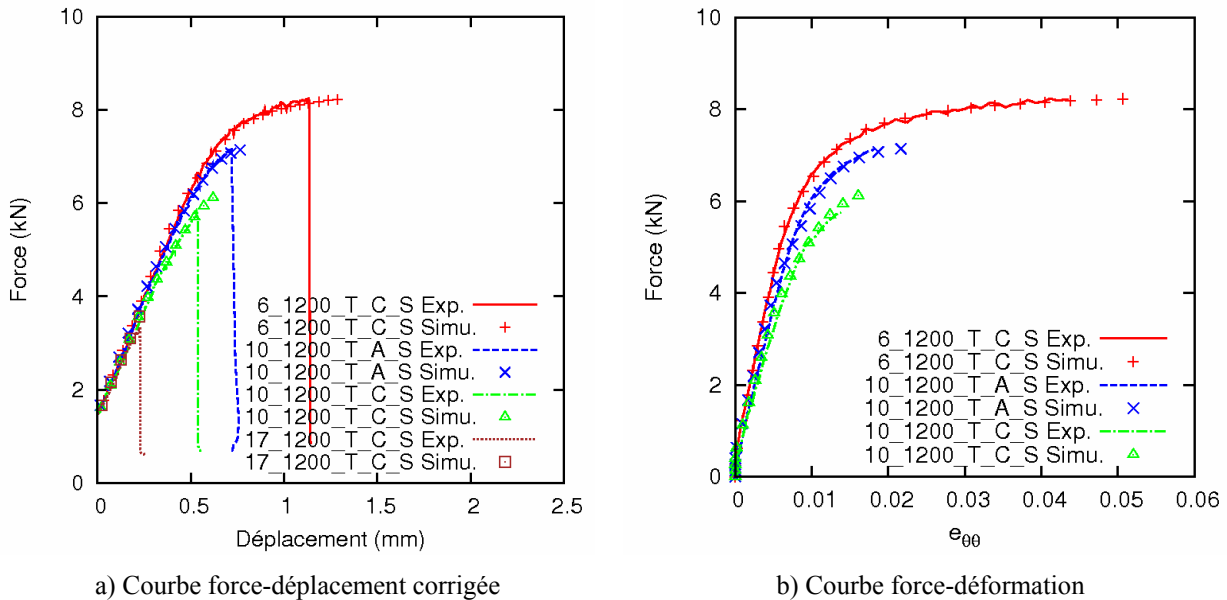
T. oxy. (°C)	ECR réel (%)	Refroidissement	$\sigma_y$ (MPa)	$Q$ (MPa)	$b$
1100	7,41	trempe	583	410	185
1100	12,53	trempe	658	299	593
1200	6,82	trempe	698	357	231
1200	11,59	trempe	570	486	393
1100	7,31	à l'air	314	408	241
1100	12,66	à l'air	529	285	414
1200	6,88	à l'air	376	364	324
1200	11,60	à l'air	355	458	585

Les courbes force-déplacement corrigées et les courbes force-déformation circonférentielle simulées et expérimentales sont présentées sur les Figures 5-18 à 5-21. La reproduction des courbes d'essai par la simulation est satisfaisante. Pour la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR de 10%, on note un bon accord entre la simulation et l'expérience sur gaines sablées avec différentes épaisseurs de la couche ex- $\beta$

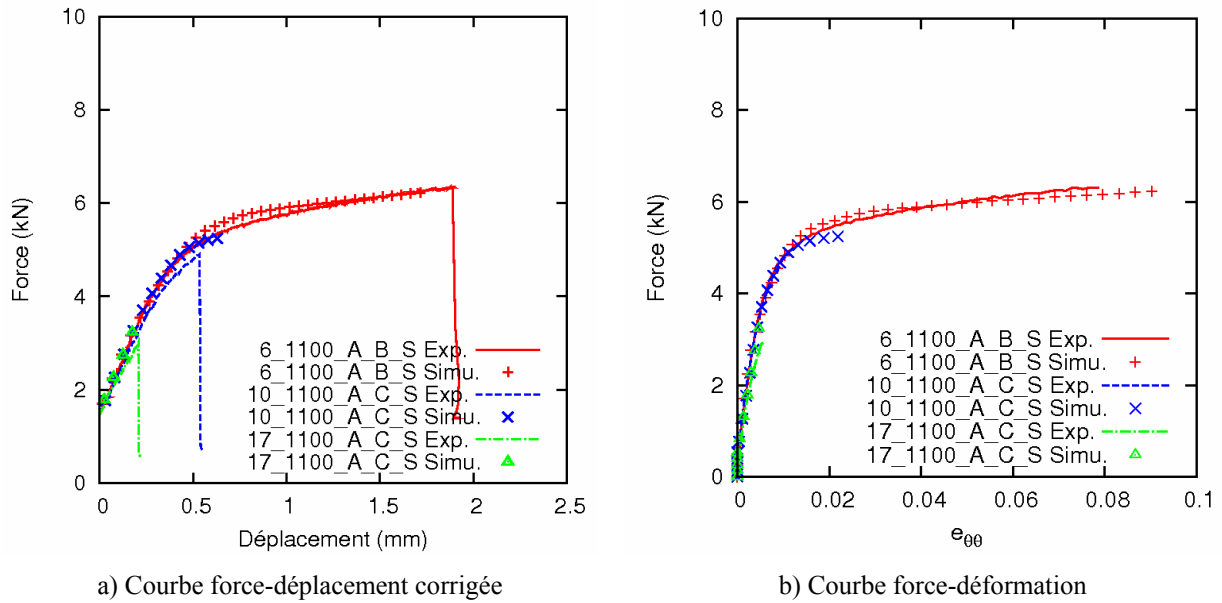
(440  $\mu\text{m}$  pour l'essai 10\_1200\_T\_A\_S et 380  $\mu\text{m}$  pour l'essai 10\_1200\_T\_C\_S, voir la Figure 5-19). Le même bon accord est également constaté sur la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec ECR visé de 10% (440  $\mu\text{m}$  pour l'essai 10\_1100\_T\_B\_S et 400  $\mu\text{m}$  pour l'essai 10\_1100\_T\_C\_S, voir la Figure 5-18). Cela valide partiellement la modélisation obtenue.



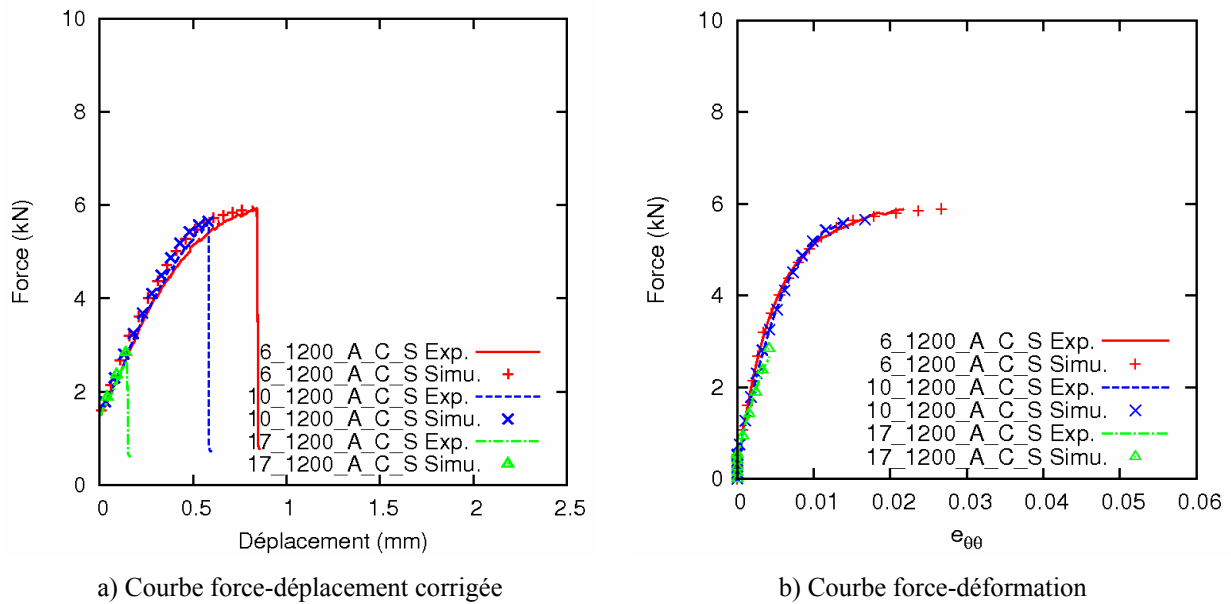
**Figure 5-18 : Simulation de l'essai EDC sur les éprouvettes sablées des gaines oxydées à 1100°C puis trempées.**



**Figure 5-19 : Simulation de l'essai EDC sur les éprouvettes sablées des gaines oxydées à 1200°C puis trempées.**



**Figure 5-20 : Simulation de l'essai EDC sur les éprouvettes sablées des gaines oxydées à 1100°C puis refroidies à l'air.**



**Figure 5-21 : Simulation de l'essai EDC sur les éprouvettes sablées des gaines oxydées à 1200°C puis refroidies à l'air.**

#### 5.4.3 Rupture de la couche ex- $\beta$

Les courbes d'essai permettent de déterminer le moment de la rupture dans la simulation. Pour les essais dont la mesure de déformation est disponible, l'instant où la déformation circonférentielle de la gaine dans la simulation atteint la déformation circonférentielle à rupture mesurée est considéré comme l'instant de la rupture dans la

simulation. Pour l'essai sur la gaine 17\_1200\_T\_C\_S dont la mesure de déformation n'est pas disponible, le moment de la rupture dans la simulation est déterminé par la force de compression à rupture pendant l'essai car cette gaine rompt de manière fragile et la rupture est donc contrôlée par la contrainte principale.

L'état de contrainte et l'état de déformation au moment de la rupture obtenus par la simulation permettent de caractériser la rupture de la gaine. Pour les gaines sablées qui rompent dans la montée élastique et ont donc un comportement fragile, la rupture est contrôlée par la contrainte principale majeure. Comme présenté dans la section 5.3.2, dans la montée élastique, la contrainte principale majeure, qui est la contrainte circonférentielle, présente un plateau dans la zone déformée de la gaine. La couche ex- $\beta$  des gaines oxydées qui rompent dans la montée élastique (gainex oxydées avec un ECR visé de 17%) présente une grande proportion d'incursion  $\alpha(O)$ . La rupture est causée par la fissuration des incursions  $\alpha(O)$  de la couche ex- $\beta$  dans la zone déformée.

Pour les gaines qui rompent dans la phase de chargement plastique, la rupture est due à la déformation plastique. Comme présenté dans la section 5.3.3, dans le chargement plastique, la déformation plastique a son maximum au plan médian sur la surface interne et un gradient décroissant dans l'épaisseur vers l'extérieur de la couche ex- $\beta$ . Or il y a également un gradient de teneur en oxygène augmentant vers l'extérieur de la couche ex- $\beta$  qui diminue la ductilité. Au plan médian, la partie plus ductile a une déformation plus élevée, la rupture peut être amorcée au milieu de l'épaisseur de la couche ex- $\beta$  où la déformation atteint localement la déformation de rupture.

Pour toutes les gaines sablées qui rompent soit dans la montée élastique, soit dans la phase de chargement plastique, la déformation équivalente maximale selon le critère de von Mises  $\epsilon_{eq}$  max. de la couche ex- $\beta$  au moment de rupture permet d'illustrer la ductilité de la couche ex- $\beta$ . La déformation équivalente maximale de la couche ex- $\beta$  au moment de rupture est présentée dans le Tableau 5-5.

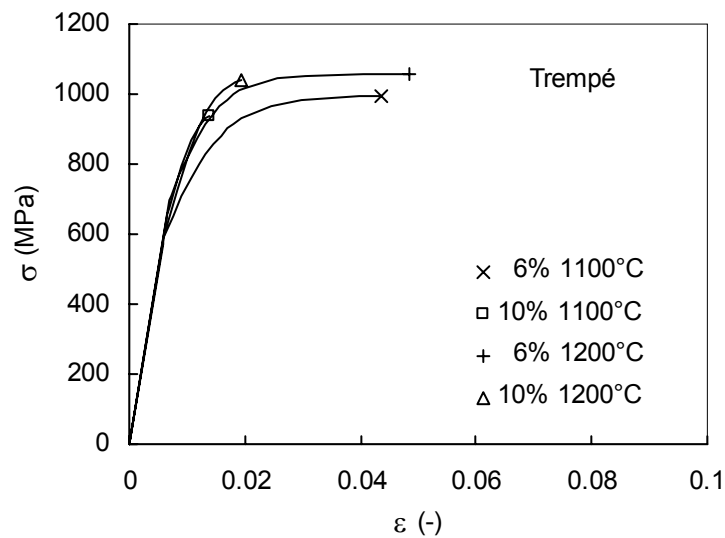
**Tableau 5-5 : Déformation équivalente  $\epsilon_{eq}$  maximale de la couche ex- $\beta$  au moment de la rupture.**

Gaine	Eprouvette	$\epsilon_{eq}$ max.
6% 1100°C trempée	6_1100_T_C_S	0,044
10% 1100°C trempée	10_1100_T_C_S	0,013
	10_1100_T_B_S	0,014
17% 1100°C trempée	17_1100_T_C_S	0,006
6% 1100°C à l'air	6_1100_A_C_S	0,088
10% 1100°C à l'air	10_1100_A_C_S	0,012
17% 1100°C à l'air	17_1100_A_C_S	0,006
6% 1200°C trempée	6_1200_T_C_S	0,049
10% 1200°C trempée	10_1200_T_C_S	0,015
	10_1200_T_A_S	0,020
17% 1200°C trempée	17_1200_T_C_S	0,005
6% 1200°C à l'air	6_1200_A_C_S	0,025
10% 1200°C à l'air	10_1200_A_C_S	0,015
17% 1200°C à l'air	17_1200_A_C_S	0,004

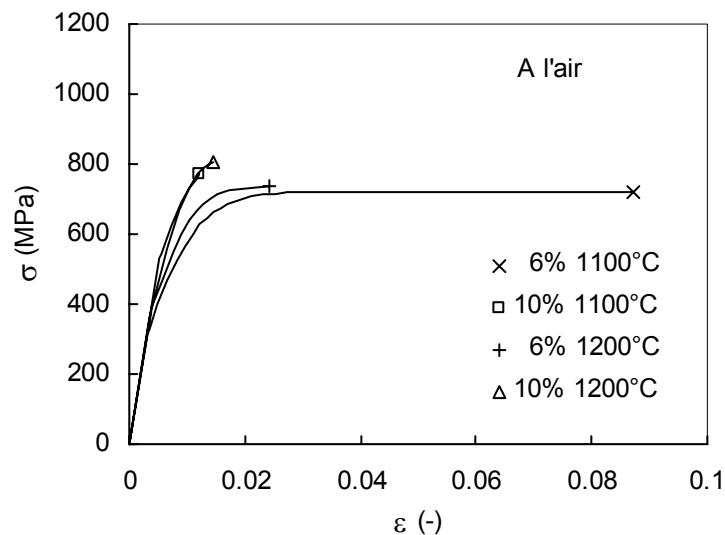


#### 5.4.4 Evolution du comportement de la couche ex- $\beta$

La relation  $\sigma$ - $\varepsilon$  tracée à partir de l'écrouissage  $R(p)$  de la couche ex- $\beta$  recalé en prenant en compte la déformation élastique est montrée sur la Figure 5-22. La relation  $\sigma$ - $\varepsilon$  est la relation entre la contrainte équivalente et la déformation équivalente selon le critère de von Mises dans la simulation de l'essai EDC. Les courbes  $\sigma$ - $\varepsilon$  s'arrêtent à une déformation  $\varepsilon$  égale à la déformation équivalente maximale présentée dans le Tableau 5-5. Pour les gaines sablées sur lesquelles plusieurs essais EDC ont été effectués, la  $\varepsilon_{eq}$  maximale la plus élevée est retenue.



a) Gains trempées



b) Gains refroidies à l'air

Figure 5-22 : Comportement élasto-plastique de la couche ex- $\beta$ .

L'évolution du comportement élasto-plastique de la couche ex- $\beta$  montre que :

- La couche ex- $\beta$  des gaines trempées est plus dure que celle des gaines refroidies à l'air ;
- L'augmentation de l'ECR durcit le comportement de la couche ex- $\beta$ ;
- L'augmentation de la température d'oxydation durcit le comportement de la couche ex- $\beta$  pour l'ECR visé de 6%. Pour l'ECR visé de 10% l'effet durcissant de l'augmentation de la température d'oxydation n'est pas évident.

Il est montré dans la section 2.4.4 que pour les gaines oxydées à 1200°C puis trempées, l'augmentation de l'ECR visé de 6% à 10% augmente la teneur en oxygène de la couche ex- $\beta$ . L'augmentation de la teneur en oxygène est la cause du durcissement de la couche ex- $\beta$ .

Pour les gaines oxydées à 1100°C puis trempées, l'augmentation de l'ECR visé de 6% à 10% baisse la teneur dans la matrice de la couche ex- $\beta$  en formant les incursions  $\alpha(O)$ . L'effet durcissant de l'augmentation de l'ECR pour les gaines oxydées à 1100°C réside donc dans l'existence des incursions  $\alpha(O)$  qui sont plus dures que la matrice de la couche ex- $\beta$ .

Pour les gaines trempées avec un ECR visé de 6%, l'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C n'augmente pas la teneur en oxygène moyenne dans la couche ex- $\beta$ , mais augmente la dispersion de la teneur en oxygène. C'est-à-dire que la couche ex- $\beta$  de la gaine oxydée à 1200°C présente une partie qui est plus riche en oxygène que celle de la gaine oxydée à 1100°C. Cette partie présente un comportement durci par la teneur en oxygène, qui entraîne un comportement macroscopique de la couche ex- $\beta$  plus dur.

La structure à lamelles de la couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air rend le comportement moins dur que celui des gaines trempées.

## 5.5 Simulation de l'essai EDC sur les gaines oxydées

Les gaines oxydées présentent trois couches : la couche ex- $\beta$ , la couche  $\alpha(O)$  et la couche  $ZrO_2$ . Ayant modélisé le comportement de la couche ex- $\beta$  dans la section 5.4.2, les comportements de la couche  $\alpha(O)$  et de la couche  $ZrO_2$  sont modélisés pour simuler l'essai EDC sur les gaines oxydées.

### 5.5.1 Modélisation du comportement de la couche $\alpha(O)$

Pendant un essai EDC, dans la zone déformée, la gaine est en traction circonférentielle et en compression radiale. La couche  $\alpha(O)$  présente de nombreuses fissures radiales avant l'essai EDC, sa résistance circonférentielle en traction est très faible. Par contre, dans le sens radial, sa résistance en compression peut être comparable à celle de la phase  $\alpha(O)$  saine.

Dans la modélisation, la couche  $\alpha(O)$  est considérée comme un matériau homogène. Comme la couche  $\alpha(O)$  a un comportement fragile et des comportements différents selon

le sens de sollicitation, une modélisation élastique isotrope transverse est effectuée. On considère le matériau isotrope dans le plan  $\theta$ - $z$ , car la dilatation de volume de la formation de la couche zirconne peut fissurer la couche  $\alpha(\text{O})$  aussi bien dans le sens circonférentiel (Figure 5-23) que dans le sens axial. Le comportement élastique isotrope transverse est représenté par cinq constantes :  $E_r$ ,  $E_\theta$ ,  $\nu_{r\theta}$ ,  $\nu_{\theta z}$  et  $G_{r\theta}$ . La matrice de souplesse s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{rr} \\ \varepsilon_{\theta\theta} \\ \varepsilon_{zz} \\ 2\varepsilon_{r\theta} \\ 2\varepsilon_{rz} \\ 2\varepsilon_{\theta z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{E_r} & -\frac{\nu_{r\theta}}{E_r} & -\frac{\nu_{r\theta}}{E_r} & 0 & 0 & 0 \\ & \frac{1}{E_\theta} & -\frac{\nu_{\theta z}}{E_\theta} & 0 & 0 & 0 \\ & & \frac{1}{E_\theta} & 0 & 0 & 0 \\ & & & \frac{1}{G_{r\theta}} & 0 & 0 \\ & & & & \frac{1}{G_{r\theta}} & 0 \\ & SYM & & & & \frac{2(1+\nu_{\theta z})}{E_\theta} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_{rr} \\ \sigma_{\theta\theta} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{r\theta} \\ \sigma_{rz} \\ \sigma_{\theta z} \end{pmatrix}.$$

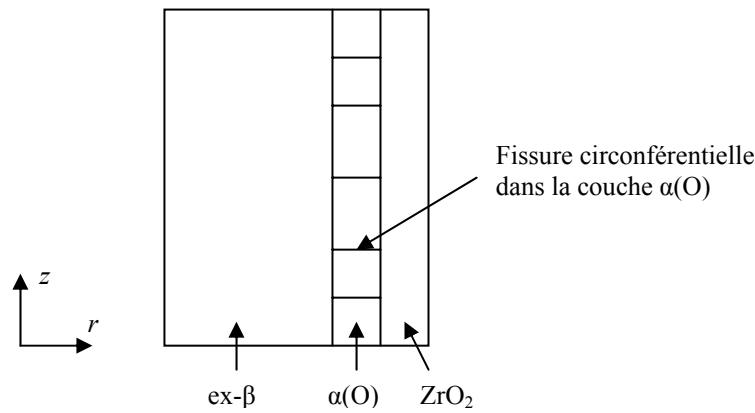


Figure 5-23 : Fissures circonférentielle dans la couche  $\alpha(\text{O})$

La mesure du module d'Young de la phase  $\alpha(\text{O})$  par nanoindentation présentée dans le chapitre 2 montre une variation entre 125GPa et 225GPa. Dans la modélisation le module d'Young dans le sens radial prend la valeur  $E_r=150\text{GPa}$ . Le module d'Young dans le sens circonférentiel prend une valeur  $E_\theta=0,1\text{GPa}$  pour décrire la faible résistance circonférentielle de la couche  $\alpha(\text{O})$ . Les autres constantes élastiques dans la modélisation sont :  $\nu_{r\theta}=0$ ,  $\nu_{\theta z}=0$ ,  $G_{r\theta}=0,1\text{GPa}$ .

### 5.5.2 Modélisation du comportement de la couche $ZrO_2$

#### Gaines oxydées puis trempées.

La couche  $ZrO_2$  est fragile et les observations présentées précédemment ont montré que la couche  $ZrO_2$  se fissure au cours de l'essai EDC à partir d'un niveau minimal de déformation dans le sens circonférentiel qui est le sens de sollicitation. Dans l'étape de chargement plastique de l'essai EDC, la couche  $ZrO_2$  est déjà multi-fissurée par la déformation circonférentielle. La comparaison des courbes d'essai sur les gaines trempées et sur les gaines trempées sablées montre que l'existence des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  augmente le niveau de la force de compression du chargement plastique de l'essai EDC. Comme la couche  $\alpha(O)$  a une résistance quasi nulle dans le sens circonférentiel, cette augmentation de la force est attribuée à la résistance de la couche  $ZrO_2$  multi-fissurée.

Pour représenter la multi-fissuration qui intervient au cours de l'essai, une modélisation phénoménologique de l'endommagement de la couche  $ZrO_2$  est adoptée. Avant la multi-fissuration, la couche  $ZrO_2$  est purement élastique. Après la fissuration, le niveau de contrainte dans la couche  $ZrO_2$  cesse d'augmenter et présente un plateau (Figure 5-24). Lors de la simulation en éléments finis, une modélisation élastique parfaitement plastique est utilisée pour décrire phénoménologiquement ce comportement de la couche  $ZrO_2$ . En effet, le chargement appliqué au cours de l'essai EDC étant monotone, la modélisation élastique parfaitement plastique permet de représenter de manière simplifiée la modélisation d'endommagement de la couche de  $ZrO_2$  décrite sur la Figure 5-24. L'endommagement par la multi-fissuration de la couche  $ZrO_2$  est donc représenté par la plastification de la modélisation élastique parfaitement plastique.

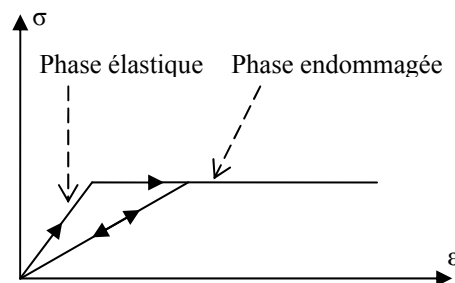


Figure 5-24 : Modélisation d'endommagement du comportement de la couche  $ZrO_2$ .

La modélisation élastique parfaitement plastique est caractérisée par trois paramètres : le module d'Young  $E$ , le coefficient de Poisson  $\nu$  et la limite d'élasticité  $\sigma_y$ .

La couche  $ZrO_2$  a une structure colonnaire, la mesure du module d'Young par nano-indentation peut être non représentative du module d'Young macroscopique. Dans la simulation le module d'Young  $E=100\text{GPa}$  est utilisé.

Il n'existe pas de mesure du coefficient de Poisson de la couche  $ZrO_2$  des gaines oxydées, le coefficient de Poisson  $\nu=0,35$  proposé par [STER07] est utilisé.

La limite d'élasticité  $\sigma_y$  de la couche  $ZrO_2$  est déterminée par la simulation. Les essais EDC sur les gaines oxydées puis trempées avec des ECR de 6% et 10%, dont la couche  $ZrO_2$  n'est pas desquamée à la trempe, sont simulés. La simulation met en œuvre le

comportement de la couche ex- $\beta$  caractérisé sur les gaines sablées dans la section 5.4. La valeur  $\sigma_y = 1000 \text{ MPa}$  permet de reproduire les courbes de l'essai EDC sur toutes les gaines trempées avec des ECR visés de 6% et 10% (Figures 5-25 à 5-28). La plastification correspond à la multi-fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$ . La limite d'élasticité  $\sigma_y = 1000 \text{ MPa}$  implique une multi-fissuration avec une déformation circonférentielle de 0,01. Elle est cohérente avec la déformation circonférentielle à l'amorçage de la multi-fissuration. Ce seuil à 0,013 a été mesuré lors de l'essai EDC interrompu sur la gaine oxydée à  $1100^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 6% (section 4.5.3).

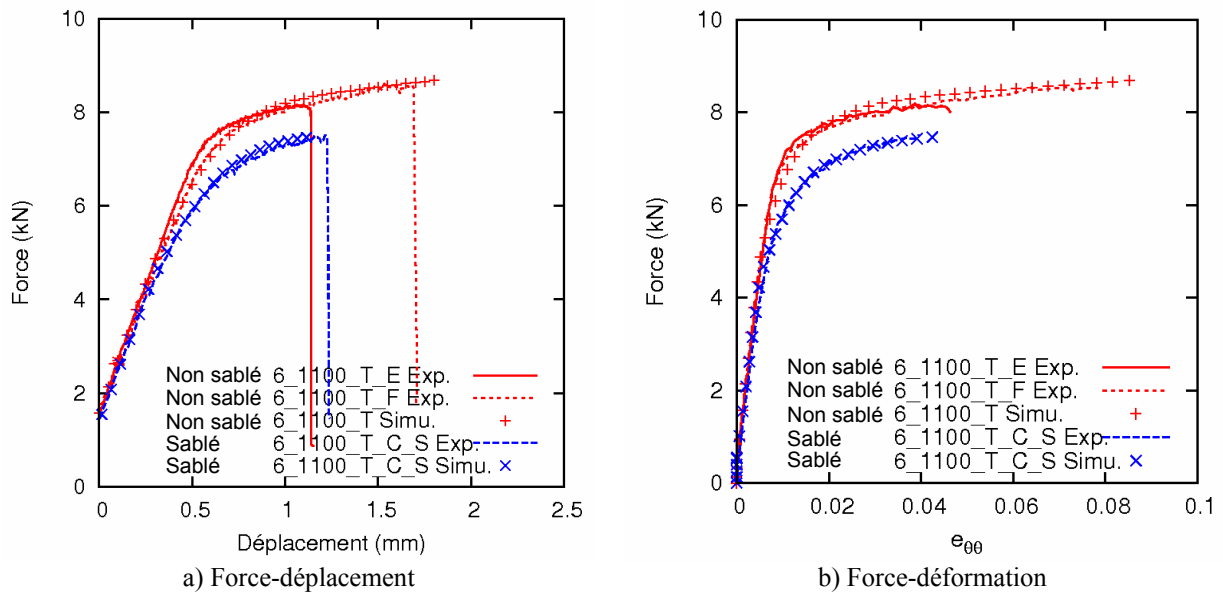


Figure 5-25 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à  $1100^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 6%.

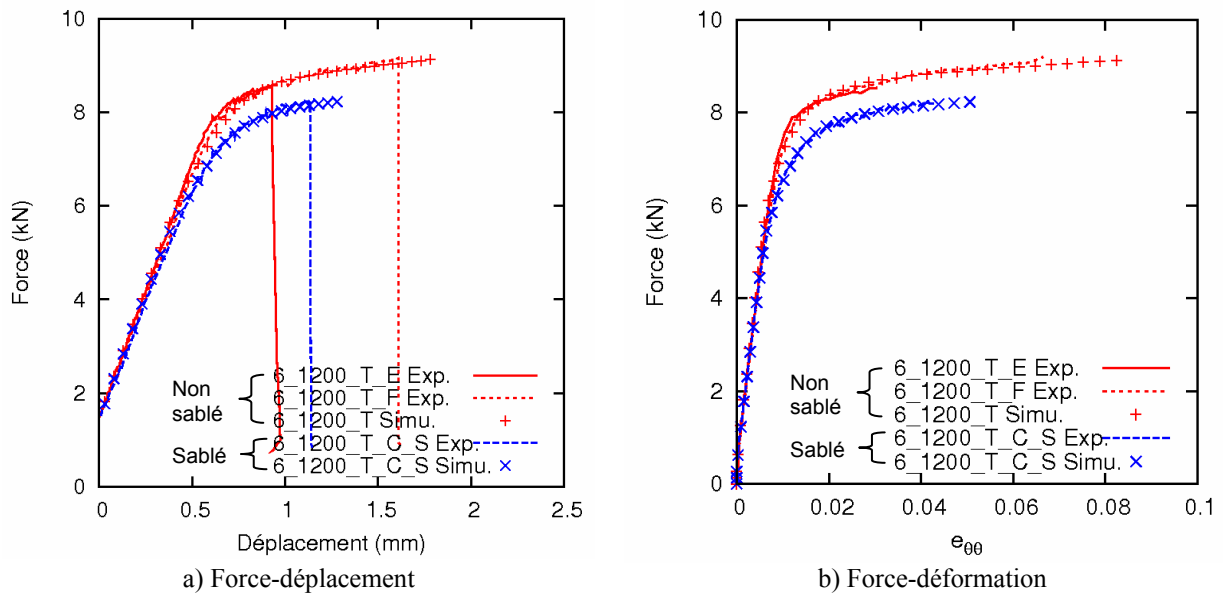
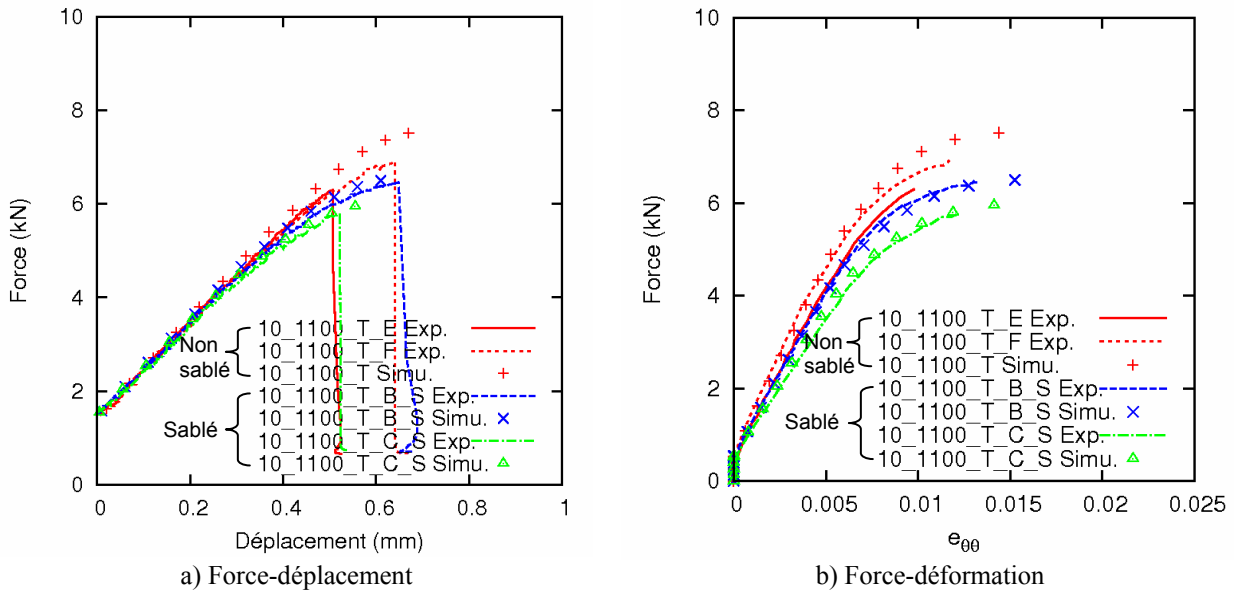
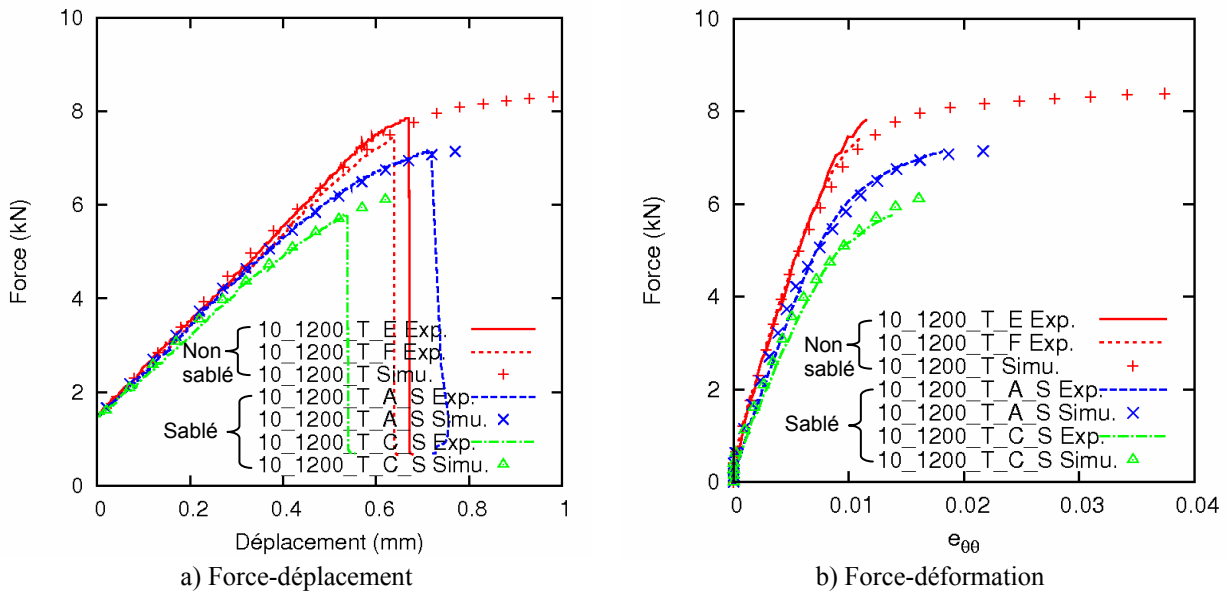


Figure 5-26 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à  $1200^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 6%.



**Figure 5-27 Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 10%.**



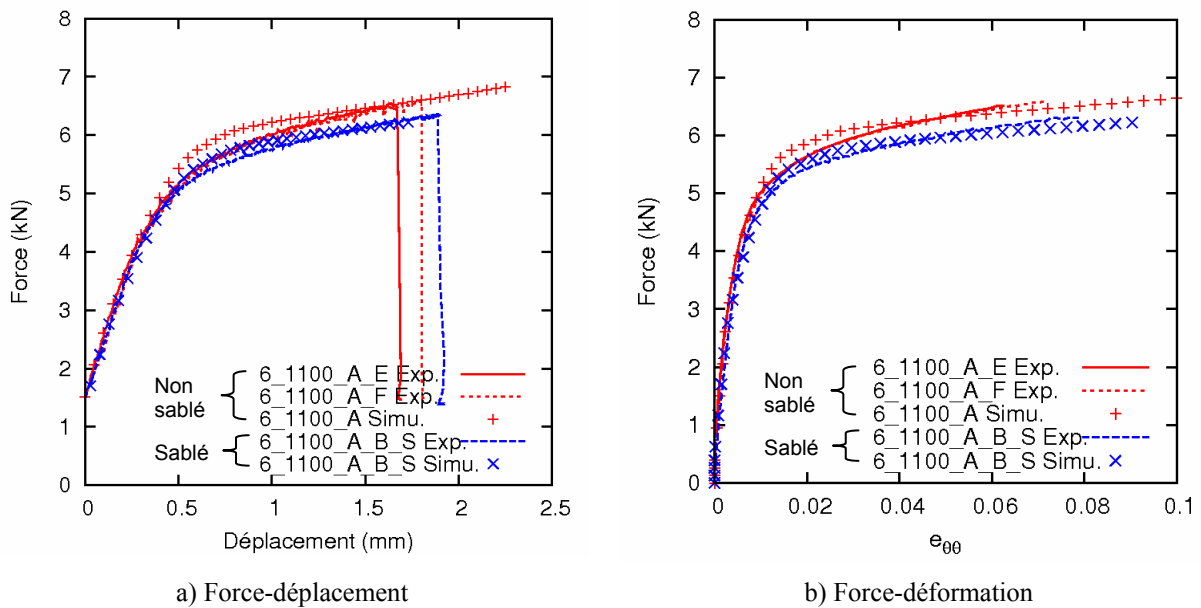
**Figure 5-28 Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis trempée avec un ECR visé de 10%.**

### Gaines oxydées puis refroidies à l'air

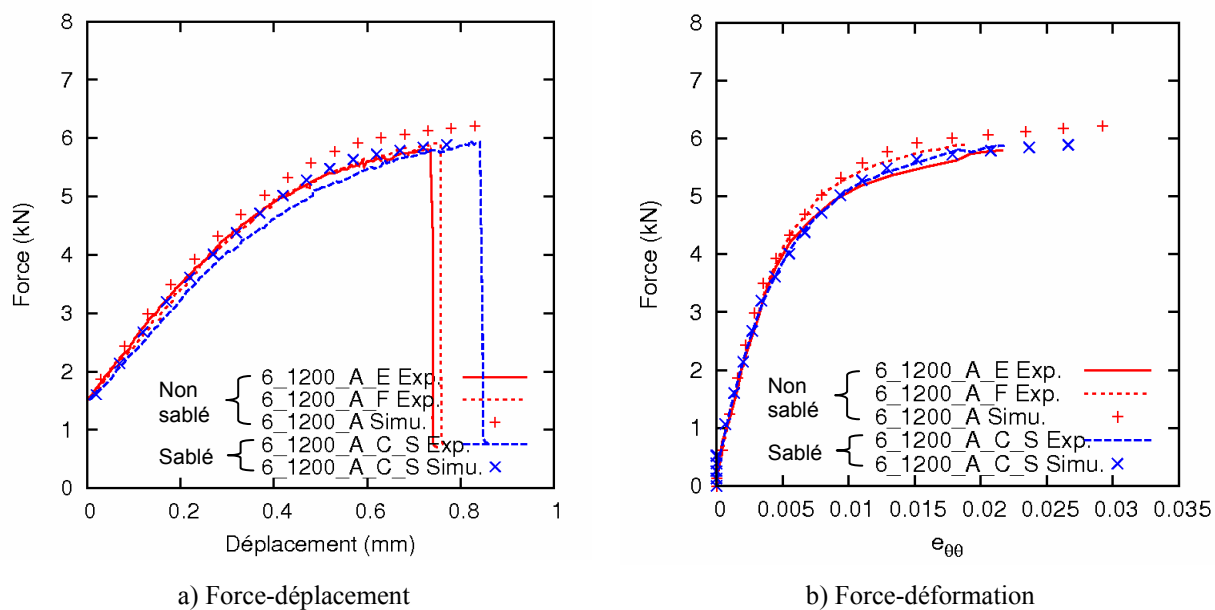
Le comportement de la couche  $ZrO_2$  des gaines oxydées puis refroidies à l'air est également modélisé par un comportement élastique parfaitement plastique. Comme pour les gaines oxydées puis trempées, le module d'Young  $E=100\text{GPa}$  et le coefficient de Poisson  $\nu=0,35$  sont utilisés. Or pour les gaines refroidies à l'air, l'augmentation du niveau de force par la présence des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  est moins marquée. Par conséquent, une limite d'élasticité plus faible  $\sigma_y=500\text{MPa}$  est utilisée. Cette valeur est purement

phénoménologique pour rapprocher les courbes simulées et celles expérimentales. Cette valeur implique que la couche  $ZrO_2$  des gaines refroidies à l'air se multi-fissure plus facilement que celle des gaines trempées. Or pour l'instant, comme aucun essai EDC interrompu n'a été effectué sur gaine oxydée puis refroidie à l'air, aucune validation n'est disponible.

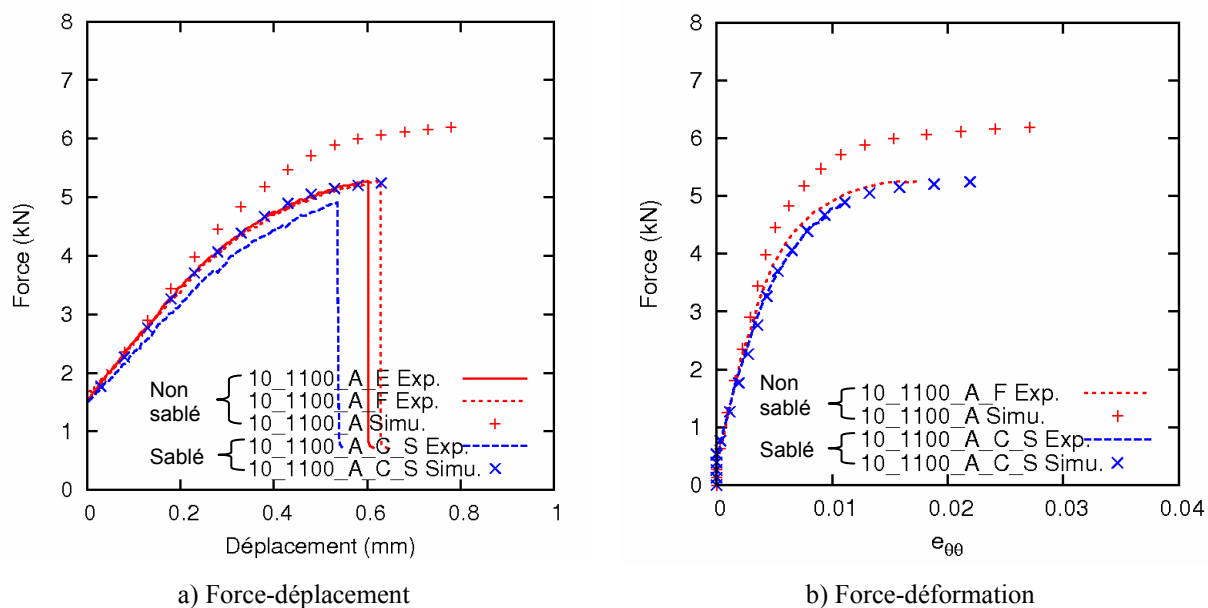
Les Figures 5-29 à 5-34 montrent les courbes force-déplacement et force-déformation de la simulation. Il est constaté que les résultats de la simulation de l'essai EDC sur gaines refroidies à l'air sont moins satisfaisants que ceux obtenus sur gaines trempées. Cela peut être dû à la modélisation d'endommagement de la couche  $ZrO_2$  adoptée qui ne serait pas représentative pour les gaines refroidies à l'air. En effet, on note que l'écart entre la simulation et l'expérience est plus prononcé dans le cas 10% d'ECR que dans les cas 6% et 17% d'ECR. Dans le cas 6% d'ECR la couche  $ZrO_2$  est moins épaisse, et sa contribution est moins importante que dans le cas 10%. Dans le cas 17% d'ECR, comme la gaine rompt tôt dans la phase de montée élastique de l'essai EDC, la couche  $ZrO_2$  ne s'est pas encore endommagée.



**Figure 5-29 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1100°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 6%.**



**Figure 5-30 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 6%.**



**Figure 5-31 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1100°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 10%.**



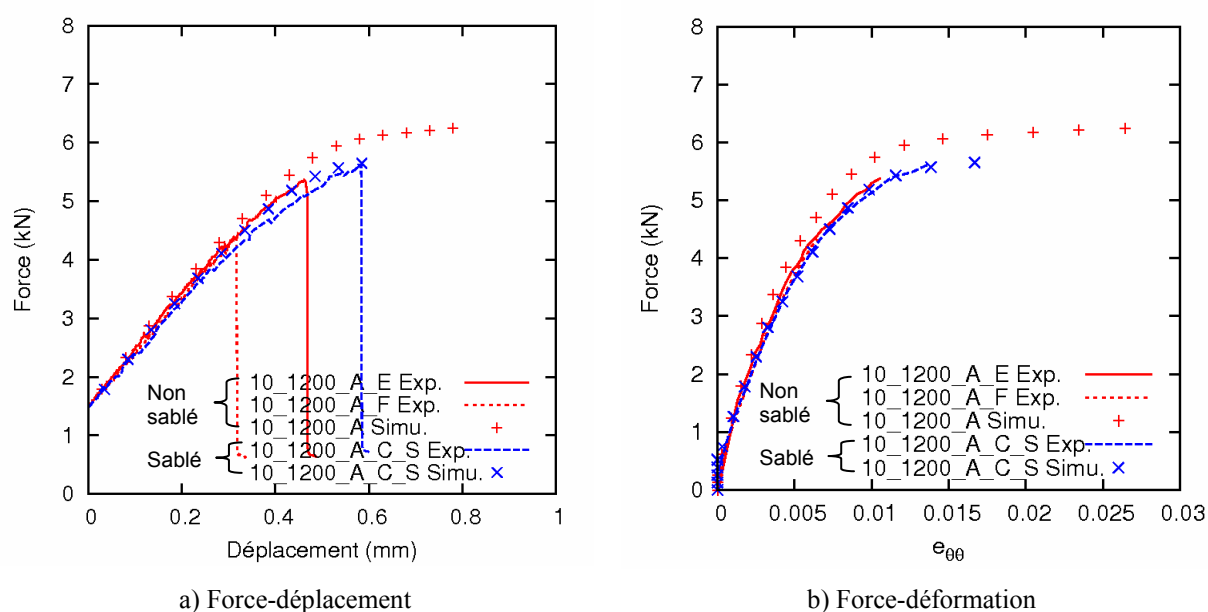


Figure 5-32 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 10%.

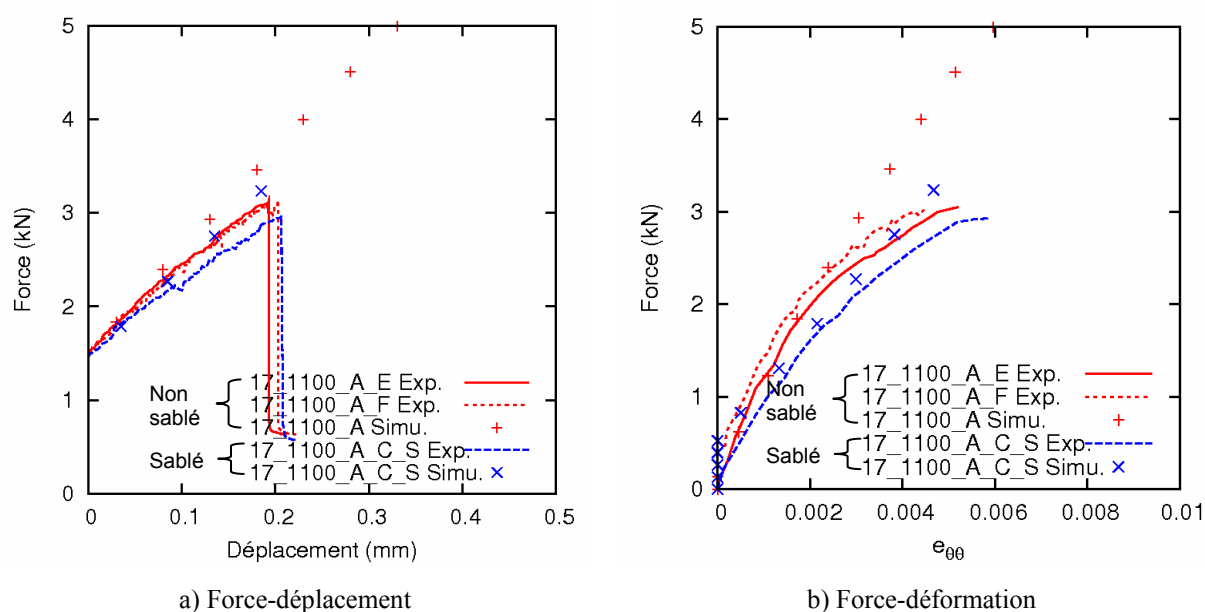


Figure 5-33 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1100°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 17%.

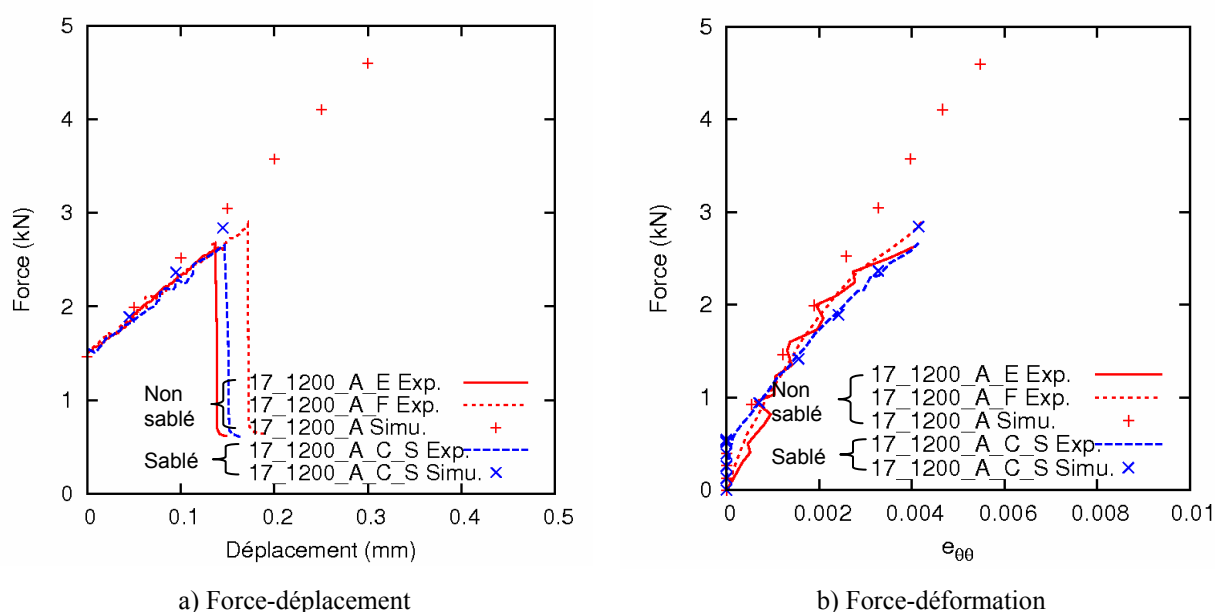


Figure 5-34 : Courbes de la simulation de l'essai EDC sur la gaine oxydée à 1200°C puis refroidies à l'air avec un ECR visé de 17%.

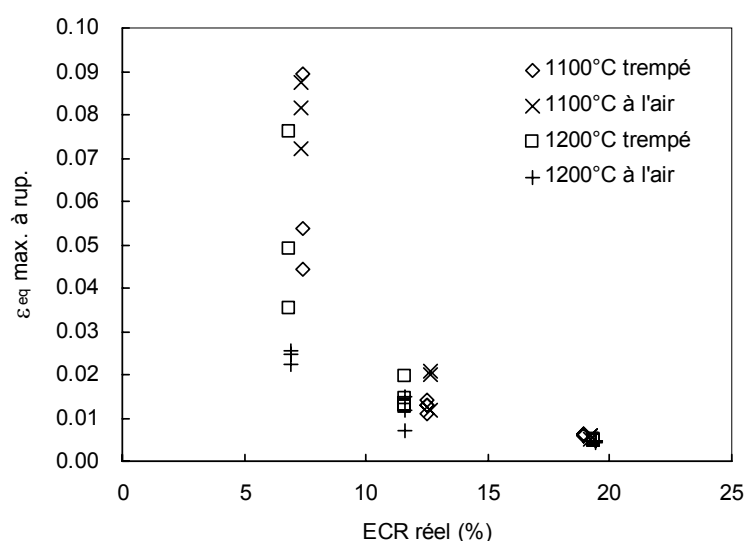
### 5.5.3 Evolution de la ductilité des gaines oxydées

A partir de la simulation de l'essai EDC sur les gaines oxydées, la déformation équivalente maximale à rupture dans la couche ex-β est déterminée et montrée dans le Tableau 5-6. Le moment où la déformation circonférentielle de la gaine atteint la déformation circonférentielle à rupture mesurée est considéré comme le moment de rupture dans la simulation. Pour les essais sur les gaines trempées avec un ECR visé de 17% dont la couche  $ZrO_2$  est desquamée à la trempe, la déformation circonférentielle à rupture n'est pas disponible, le moment de rupture est déterminé par l'atteinte de la force de compression à rupture.

**Tableau 5-6 : Déformation équivalente maximale dans l'ex-β lors de la rupture.**

Gaine	Eprouvette	$\varepsilon_{eq}$ max. à rup.
6% 1100°C trempée	6_1100_T_E	0,054
	6_1100_T_F	0,089
10% 1100°C trempée	10_1100_T_E	0,011
	10_1100_T_F	0,013
17% 1100°C trempée	17_1100_T_E	0,006
	17_1100_T_F	0,006
6% 1100°C à l'air	6_1100_A_E	0,072
	6_1100_A_F	0,082
10% 1100°C à l'air	10_1100_A_E	0,021
	10_1100_A_F	0,020
17% 1100°C à l'air	17_1100_A_E	0,006
	17_1100_A_F	0,005
6% 1200°C trempée	6_1200_T_E	0,035
	6_1200_T_F	0,076
10% 1200°C trempée	10_1200_T_E	0,013
	10_1200_T_F	0,012
17% 1200°C trempée	17_1200_T_E	0,005
	17_1200_T_F	0,005
6% 1200°C à l'air	6_1200_A_E	0,025
	6_1200_A_F	0,022
10% 1200°C à l'air	10_1200_A_E	0,012
	10_1200_A_F	0,007
17% 1200°C à l'air	17_1200_A_E	0,005
	17_1200_A_F	0,005

La Figure 5-35 montre la déformation équivalente maximale dans la couche ex-β lors de la rupture des essais EDC sur gaines oxydées et sur gaines sablées, en fonction de l'ECR réel. On constate que l'évolution de la déformation totale équivalente et l'évolution de la déformation circonférentielle à rupture mesurée dans l'essai EDC (section 4.3.1) sont identiques.

**Figure 5-35 : Déformation équivalente maximale de la couche ex-β lors de la rupture en fonction de l'ECR réel.**

## 5.6 Validation de la modélisation du comportement des gaines oxydées par la simulation de l'essai de compression d'anneau

Le comportement des gaines oxydées à haute température a été largement étudié par l'essai de compression d'anneau [BILL07, BRAC01]. Dans cette section, l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées est simulé avec les comportements des trois couches des gaines oxydées déterminés par l'essai EDC dans les sections 5.4 et 5.5. La simulation de l'essai de compression d'anneau est destinée à valider les comportements déterminés dans les sections 5.4 et 5.5.

### 5.6.1 Essai de compression d'anneau sur gaines oxydées

Des essais de compression d'anneau sur gaines oxydées effectués par Brachet et al [BRAC01] seront modélisés. La Figure 5-36 présente le dispositif d'essai. Des tronçons de 10 mm de longueur de gaines oxydées sont utilisés. Deux essais de compression d'anneau sur les gaines oxydées à 1100°C avec des gains de masse de 7,8 mg/cm<sup>2</sup> et 13,3 mg/cm<sup>2</sup> seront modélisés et simulés.

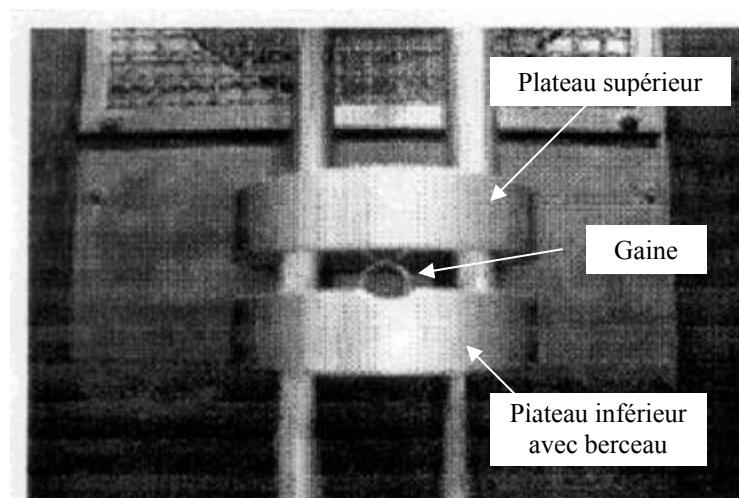


Figure 5-36 : Dispositif de l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées [BRAC01].

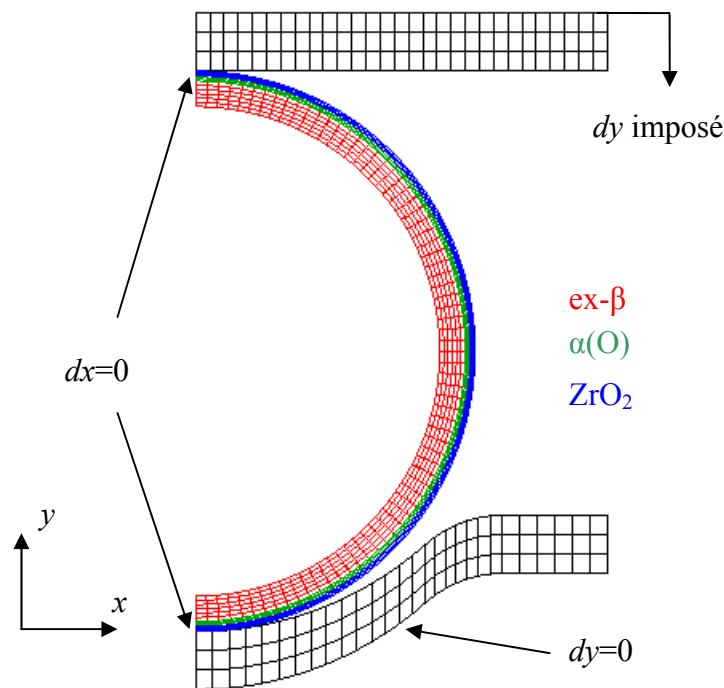
### 5.6.2 Modélisation de l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées

L'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées est modélisé en 2D, avec l'hypothèse de déformations planes. En effet, Busser [BUSS09B] a étudié la modélisation de l'essai de compression d'anneau et a montré qu'une modélisation 2D en déformations planes permet de bien le simuler.

Le premier essai de compression d'anneau qui sera modélisé, a été effectué sur une gaine avec un gain de masse est de 7,8 mg/cm<sup>2</sup>. Dans la modélisation, les épaisseurs retenues pour les différentes couches seront celles de la gaine oxydée à 1100°C puis trempée avec un ECR visé de 6% de cette étude (gain de masse de 9,05 mg/cm<sup>2</sup>). Le

second essai de compression d'anneau qui sera modélisé, a été effectué sur une gaine avec un gain de masse est de  $13,3 \text{ mg/cm}^2$ . Dans la modélisation, les épaisseurs retenues pour les différentes couches seront alors celles à la gaine oxydée à  $1100^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 10% (gain de masse de  $15,3 \text{ mg/cm}^2$ ).

Dans un essai de compression d'anneau, les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  peuvent subir des endommagements avant la rupture. Pour déterminer l'éventuel endommagement que peuvent subir les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$ , une simulation de l'essai de compression d'anneau avec une modélisation non endommagée des couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  est tout d'abord effectuée. Ainsi, la couche  $\alpha(\text{O})$  prend une modélisation élastique avec  $E=150\text{GPa}$  et  $\nu=0,35$ , et pour la couche  $\text{ZrO}_2$  une modélisation élastique avec  $E=100\text{GPa}$  et  $\nu=0,35$ . Le comportement de la couche ex- $\beta$  prend la modélisation élasto-plastique avec écrouissage isotrope déterminée dans la section 5.4.2. En prenant en compte la symétrie, seulement une moitié de la structure est modélisée. La Figure 5-37 montre le maillage et les conditions aux limites de la modélisation de l'essai de compression d'anneau. Les éléments quadrangles quadratiques avec intégration réduite sont utilisés avec 6 éléments dans l'épaisseur de la couche ex- $\beta$ , 3 éléments dans l'épaisseur pour les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$ . La forme de berceau du plateau inférieur est prise en compte et un contact dur sans frottement entre les plateaux et la gaine est utilisé.



**Figure 5-37 : Maillage et conditions aux limites de la modélisation de l'essai de compression d'anneau, avec une modélisation non endommagée des couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$**

Les résultats de la simulation montrent qu'avec un déplacement de compression de 1 mm, il y a de fortes contraintes de compression circonférentielles ( $> 1000 \text{ MPa}$ ) dans les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  dans une zone de  $35^\circ$  au pôle nord et une zone de  $55^\circ$  au pôle sud (Figure 5-38).

La desquamation de la couche  $\text{ZrO}_2$  des gaines oxydées lors de la trempe pour des forts niveaux d'oxydation (section 2.3.4) et la desquamation de la couche  $\text{ZrO}_2$  dans la zone de transition lors de la rupture pendant l'essai EDC (section 4.5.1) montrent que la couche  $\text{ZrO}_2$  ne supporte pas une forte compression circonférentielle. Dans un essai de compression d'anneau la couche  $\text{ZrO}_2$  qui se situe dans des zones de forte compression circonférentielle doit certainement desquamer. Cela nous amène à considérer la couche  $\text{ZrO}_2$  aux pôles nord et sud inexistante physiquement.

Aux pôles nord et sud, sans la présence de la couche  $\text{ZrO}_2$ , la couche  $\alpha(\text{O})$  est directement en contact avec les plateaux de compression, ce qui crée une forte contrainte radiale dans la couche  $\alpha(\text{O})$ . Comme la couche  $\alpha(\text{O})$  est très fragile, elle ne peut pas supporter cette forte contrainte radiale et peut être considérée inexistante aux pôles nord et sud.

Au final, la modélisation de l'essai de compression tenant compte de l'endommagement des couches fragiles est réalisée en retirant sur  $35^\circ$  au pôle nord et sur  $55^\circ$  au pôle sud les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  (Figure 5-39). Les couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$  restantes sont en traction circonférentielle dans l'essai de compression d'anneau, les endommagements liés à la multi-fissuration de la couche  $\alpha(\text{O})$  avant l'essai et à la multi-fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$  au cours de l'essai sont considérés. Leurs comportements sont alors identiques à ceux décrits dans les sections 5.5.1 et 5.5.2.

On notera que cette modélisation ne représente donc pas les phénomènes d'endommagement des couches fragiles qui interviennent au début de l'essai.

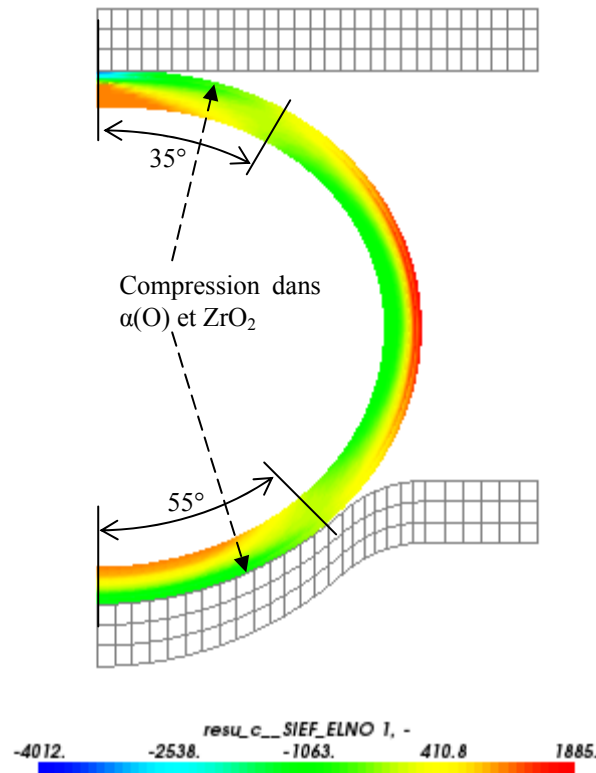
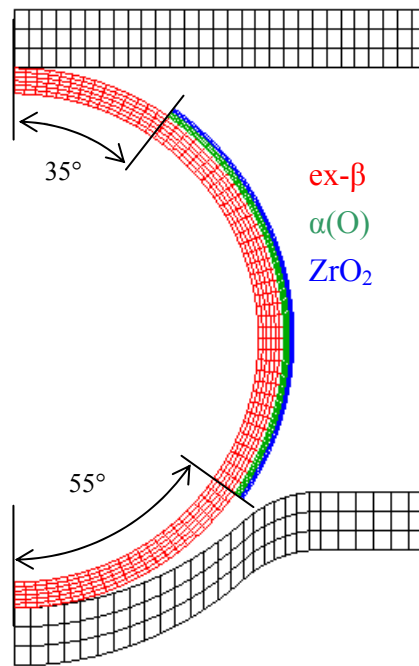


Figure 5-38 : Contrainte circonférentielle de la gaine oxydée à  $1100^\circ\text{C}$  puis trempée avec un ECR visé de 10% dans l'essai de compression d'anneau avec un déplacement de compression de 1 mm.



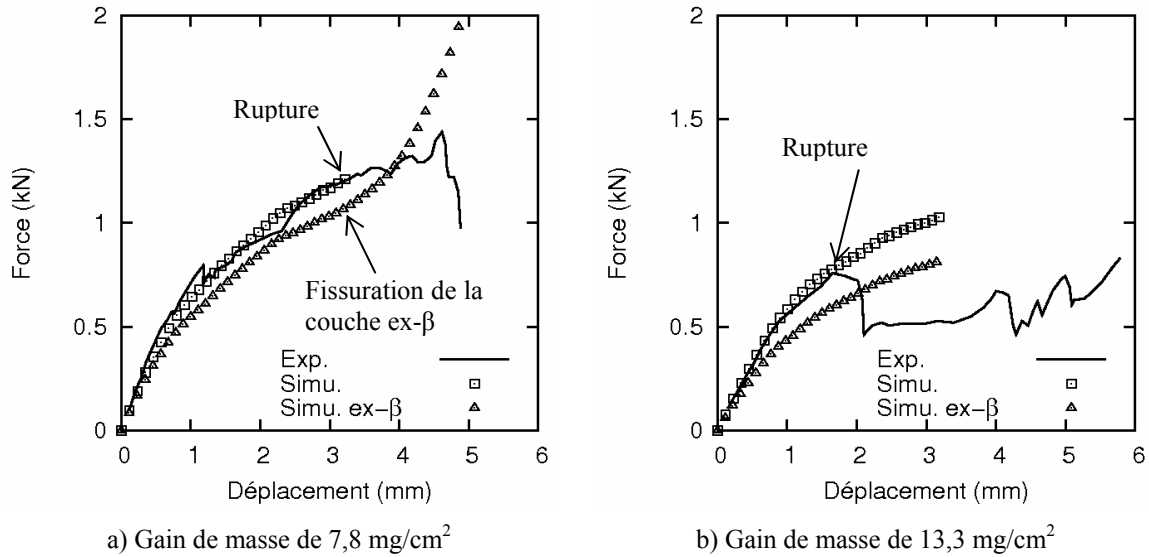
**Figure 5-39 : Modélisation de l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées puis trempées en retirant les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  aux pôles.**

Enfin, la modélisation retenue est également différente de celle utilisée par [CABR12]. Pour la couche  $ex-\beta$ , [CABR12] utilise le même formalisme de loi de comportement que dans notre étude. Pour la couche  $\alpha(O)$ , un comportement élastique isotrope est utilisé dans les zones où cette couche est en compression et un comportement élastique orthotrope est mis en œuvre dans les zones en traction (autour de l'équateur) avec un module d'Young très faible selon la direction circonférentielle. Pour la couche  $ZrO_2$ , un comportement élastique est utilisé. Afin de représenter la fissuration progressive de cette couche, trois stades ont été définis dans l'essai et la modélisation. Le stade 1 correspond à une couche  $ZrO_2$  intègre et présente sur toute la circonférence de la gaine. Le stade 2 correspond à une couche  $ZrO_2$  uniquement présente autour de l'équateur suite à sa desquamation aux pôles. Le stade 3 final correspond à une gaine où la couche  $ZrO_2$  aux pôles est multi-fissurée et ne contribue plus à la rigidité de l'ensemble.

### 5.6.3 Résultats de la simulation

La Figure 5-40 montre les courbes force-déplacement de la simulation (la raideur de la machine de 5,5kN/mm [LESA10] est appliquée sur les courbes simulées). L'essai de compression d'anneau sur les gaines qui ne comportent que la couche  $ex-\beta$  est également simulé (Simu.  $ex-\beta$  sur la Figure 5-40).

L'existence des couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  augmente la force de compression de manière non négligeable. La reproduction des courbes expérimentales par la simulation avec les couches  $\alpha(O)$  et  $ZrO_2$  valide la modélisation des comportements des trois couches des gaines oxydées déterminée à partir de l'essai EDC.



**Figure 5-40 : Simulation de l'essai de compression d'anneau sur les gaines oxydées à 1100°C puis trempées.**

Pour la gaine dont le gain de masse est de 7,8 mg/cm<sup>2</sup>, la courbe force-déplacement de la simulation de la gaine qui ne comporte que la couche ex-β montre un durcissement géométrique à un déplacement de compression élevé (Figure 5-40a). Ce durcissement n'est pas montré sur la courbe expérimentale. Il est donc très probable que la couche ex-β soit fissurée au moment du durcissement. Le moment de la rupture de la gaine dans l'essai de compression d'anneau est déterminé par la fissuration de la couche ex-β (Figure 5-40a).

Pour la gaine oxydée dont le gain de masse est de 13,3 mg/cm<sup>2</sup>, la première chute de force de la courbe force-déplacement correspond à la rupture de la gaine oxydée (Figure 5-40b). La Figure 5-41 montre la contrainte circonférentielle  $\sigma_{\theta\theta}$  et la déformation équivalente  $\varepsilon_{eq}$  dans la couche ex-β au moment de la rupture. Il y a de fortes contraintes circonférentielles au pôle nord et près de l'équateur par un effet de flexion. La partie intérieure au pôle nord et la partie extérieure près de l'équateur de la couche ex-β sont en forte traction circonférentielle (Figure 5-41a). Dans ces deux zones en traction circonférentielle de la couche ex-β, la déformation totale équivalente  $\varepsilon_{eq}$  est plus élevée en peau interne au pôle nord qu'en peau externe à l'équateur (Figure 5-41). Cependant, l'essai de compression d'anneau montre que l'amorçage de la fissuration de la couche ex-β a lieu à l'équateur. En effet, comme il y a un gradient de teneur en oxygène dans l'épaisseur de la couche ex-β, la partie intérieure est moins riche en oxygène et donc plus ductile que la partie extérieure. C'est donc la zone externe à l'équateur qui fissure d'abord. On peut conclure que cette gaine fissure à une déformation équivalente de 0,0268 dans la couche ex-β.

Pour la gaine oxydée dont le gain de masse est de 7,8 mg/cm<sup>2</sup>, la rupture a lieu avec une déformation totale équivalente de 0,178 dans la couche ex-β (Figure 5-42).



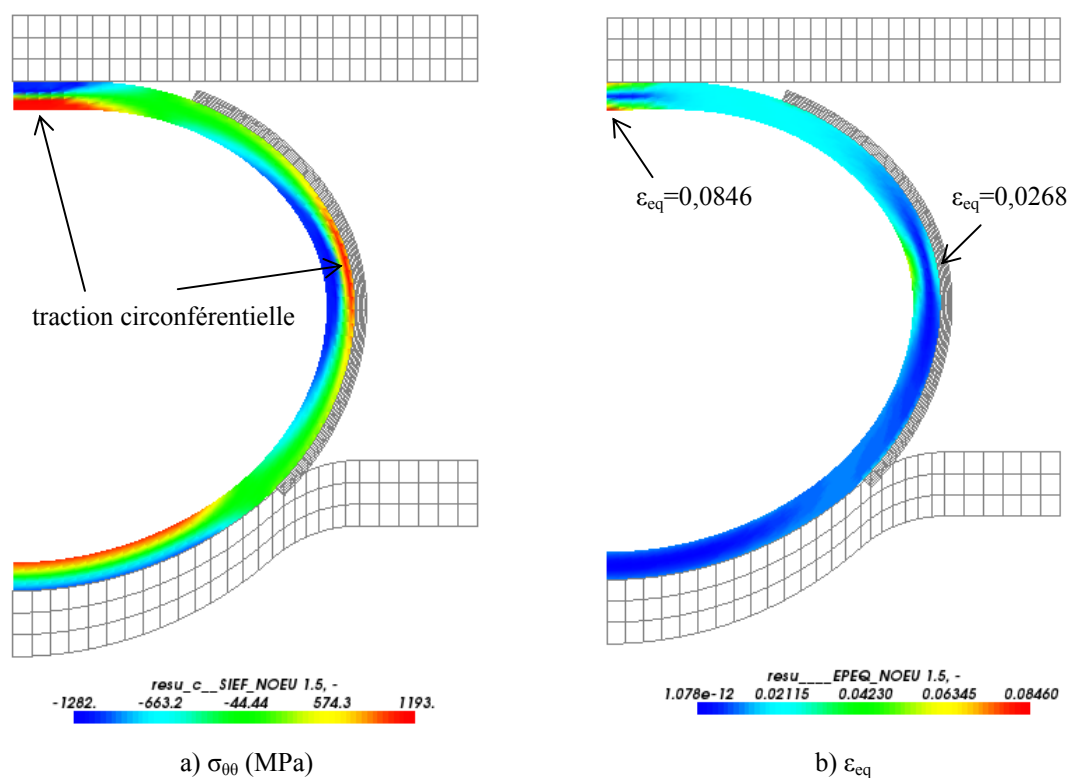


Figure 5-41 : Contrainte circonférentielle  $\sigma_{\theta\theta}$  et déformation totale équivalente  $\epsilon_{eq}$  au moment de la rupture de la gaine oxydée à 1100°C avec un gain de masse de 13,3 mg/cm<sup>2</sup>.

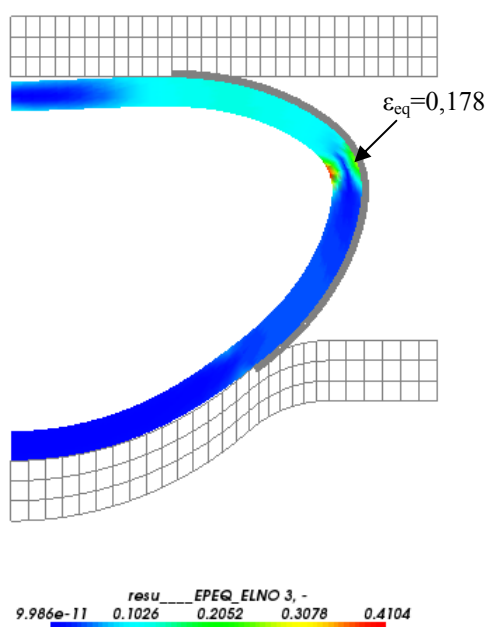
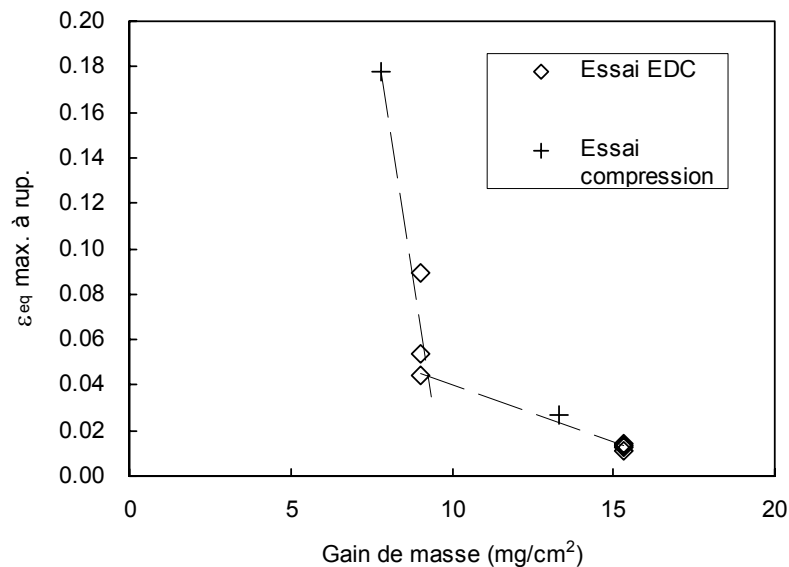


Figure 5-42 : Déformation totale équivalente  $\epsilon_{eq}$  au moment de la rupture de la gaine oxydée à 1100°C avec un gain de masse de 7,8 mg/cm<sup>2</sup>.

Les gaines dans la simulation des essais de compression d'anneau ont des niveaux d'oxydation différents de ceux des gaines dans la simulation des essais EDC. La déformation équivalente  $\varepsilon_{eq}$  maximale à rupture de la couche ex- $\beta$  est présentée sur la Figure 5-43 en fonction du niveau d'oxydation exprimé en gain de masse. La diminution de  $\varepsilon_{eq}$  maximale à rupture avec l'augmentation du niveau d'oxydation montre que les deux essais de compression d'anneau se placent de façon cohérente par rapport aux essais EDC. Le critère de rupture des gaines oxydées déterminé à partir de l'essai EDC (section 5.5.3) est validé par l'essai de compression d'anneau. Il peut s'exprimer par :

- Si gain de masse  $< 9 \text{ mg/cm}^2$ ,  $\varepsilon_{eq} \text{ max} = -0,9250 \times (\text{gain de masse}) + 0,8996$
- Si gain de masse  $> 9 \text{ mg/cm}^2$ ,  $\varepsilon_{eq} \text{ max} = -0,0051 \times (\text{gain de masse}) + 0,0912$



**Figure 5-43 : Déformation équivalente  $\varepsilon_{eq}$  maximale à rupture de la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées à 1100°C puis trempées caractérisée par la simulation des essais EDC et des essais de compression d'anneau.**

## 5.7 Conclusion

Ce chapitre a été dédié à la modélisation de l'essai EDC sur les gaines oxydées. Les paramètres de modélisation de l'essai EDC ont tout d'abord été déterminés à partir de l'essai de compression sur le pion en Téflon et de la simulation de l'étape de montée élastique de l'essai EDC sur gaine vierge. Ensuite le comportement mécanique de la couche ex- $\beta$  a été modélisé par une modélisation élasto-plastique avec écrouissage isotrope dont la loi d'écrouissage est déterminée à partir des essais EDC sur gaines sablées. Pour prendre en compte l'endommagement des couches  $\alpha(\text{O})$  et  $\text{ZrO}_2$ , la couche  $\alpha(\text{O})$  est modélisée par une modélisation élastique isotrope transverse et la couche  $\text{ZrO}_2$  est modélisée par une modélisation élastique parfaitement plastique donc la plastification correspond à la multi-fissuration de la couche  $\text{ZrO}_2$  pendant l'essai EDC. Le critère de rupture des gaines oxydées est présenté par la déformation totale équivalente au sens de von Mises de la couche ex- $\beta$ . La modélisation du comportement et le critère de rupture des

gaines oxydées ont été validés par la simulation de l'essai de compression d'anneau sur gaines oxydées.



## 6 Conclusions et perspectives

### 6.1 Conclusions

L'objectif de la thèse était de caractériser le comportement à rupture des gaines de crayon combustible oxydées à haute température. Des gaines en Zircaloy-4 détendu ont été oxydées à 1100°C et à 1200°C en vapeur avec des niveaux d'oxydation variés de 3% à 30% d'ECR réel puis elles ont été refroidies avec deux scénarios de refroidissement différents (trempe à l'eau ou refroidissement à l'air). Le comportement des gaines oxydées a ensuite été caractérisé par l'essai EDC qui a été développé dans le cadre de cette thèse.

Les gaines oxydées à haute température comportent trois couches qui sont, de la peau externe à la peau interne des gaines, la couche  $\text{ZrO}_2$  noire de structure colonnaire, la couche  $\alpha(\text{O})$  multifissurée, et la couche ex- $\beta$ . La ductilité des gaines oxydées est déterminée par celle de la couche ex- $\beta$ . Cette conclusion a pu être validée grâce à des essais sur gaines préalablement sablées afin de ne tester que la phase ex- $\beta$ . La fragilisation des gaines est donc due à l'augmentation de la prise d'oxygène de la couche ex- $\beta$ . L'augmentation de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  peut conduire à la formation et à la croissance d'incursions de phase  $\alpha(\text{O})$ . Les incursions  $\alpha(\text{O})$  fissurent de manière fragile, ce qui entraîne une rupture précoce de la couche ex- $\beta$ . Des comportements ductile et fragile peuvent être distingués par la présence ou non d'une étape de chargement plastique prononcée dans un essai EDC. Un seuil de transition ductile-fragile est obtenu pour un ECR réel entre 7% et 12%.

Lorsqu'il n'y a pas d'incursion  $\alpha(\text{O})$  dans la couche ex- $\beta$ , l'augmentation de la température d'oxydation de 1100°C à 1200°C conduit à une augmentation de la dispersion de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  qui se traduit par des ductilités plus dispersées. La couche ex- $\beta$  des gaines refroidies à l'air présente une structure en lamelles, qui rend le comportement mécanique de la couche ex- $\beta$  moins dur que celui des gaines trempées. Cette tendance est confirmée par les mesures de nanodureté. Tant que les incursions de phase  $\alpha(\text{O})$  sont absentes, la phase ex- $\beta$  a un comportement élasto-plastique.

On peut considérer que la phase  $\alpha(\text{O})$  est fissurée à l'issue du refroidissement. La couche  $\text{ZrO}_2$  se fissure au cours de l'essai EDC à partir d'un certain niveau de déformation circonférentielle. La comparaison des essais sur gaines sablées ou non permet de conclure que la couche  $\text{ZrO}_2$  supporte des contraintes importantes de sorte que l'effort lors d'un essai d'EDC est plus faible pour les gaines sablées. Cette tendance est plus marquée dans le cas des gaines trempées que dans le cas des gaines refroidies à l'air.

Les différents essais mécaniques et les observations des gaines avant et après rupture ont permis de proposer un scénario de rupture des gaines et de mettre en place une

simulation par la méthode des éléments finis du comportement des gaines oxydées. Le comportement de la couche  $\text{ex-}\beta$  est supposé élasto-plastique avec écrouissage isotrope. Cette loi dépend de la température d'oxydation, du refroidissement et de la teneur en oxygène. Le comportement de la couche  $\alpha(\text{O})$  est supposé élastique isotrope transverse afin de représenter la multifissuration pré-existante de cette couche. La couche  $\text{ZrO}_2$  est représentée par un modèle élastique parfaitement plastique pour prendre en compte simplement l'endommagement progressif de cette couche. Un critère de rupture en déformation totale équivalente au sens de von Mises de la couche  $\text{ex-}\beta$  est établi. Cette stratégie de modélisation permet de bien reproduire l'ensemble des essais EDC. La modélisation du comportement et le critère de rupture sont validés par la modélisation de l'essai de compression d'anneau. La modélisation du comportement et le critère de rupture proposés permettront de fournir les éléments pour valider les critères de sûreté liés à l'APRP.

## 6.2 Perspectives

### Développement de l'essai EDC

Dans cette thèse, le déplacement de la traverse de la machine est enregistré pendant un essai EDC, et le déplacement des pistons est estimé en effectuant des corrections. Il serait souhaitable de mesurer directement le déplacement des pistons. Une solution qui peut être directement appliquée sur le montage de l'essai EDC développé dans cette thèse est d'appliquer un mouchetis également sur les pistons et de mesurer le déplacement des pistons par corrélation d'images.

L'un des problématiques de l'essai EDC est de garantir l'alignement des pistons et le parallélisme des surfaces de contact des pistons. Pour améliorer l'alignement des pistons et le parallélisme des surfaces de contact des pistons, un système de compression avec guidage axial pourrait être conçu et mis en place. Ce système serait particulièrement utile dans le cas où des matériaux très ductiles seraient caractérisés par l'essai EDC. Les conséquences d'un désalignement seraient alors plus importantes que pour les matériaux qui ont été caractérisés dans cette thèse.

### Caractérisation de la transition ductile-fragile

Les niveaux d'oxydation investigués dans ce travail ne permettent pas de déterminer précisément le comportement dans la transition ductile-fragile. Des études complémentaires seraient intéressantes pour des niveaux d'oxydation des gaines entre 7 et 12% d'ECR réel.

De plus, la prise d'hydrogène dans la gaine a un effet fragilisant. La caractérisation de la transition ductile-fragile pour des matériaux pré-hydrurés serait nécessaire. Des gaines en Zy4 détendu ont été hydrurées à 200 ppm, 300 ppm et 600 ppm par chargement cathodique dans le cadre de cette thèse. Les gaines hydrurées ont ensuite été oxydées dans le dispositif DEZIROX au CEA. Le comportement mécanique des gaines hydrurées puis oxydées reste à caractériser par l'essai EDC pour étudier l'influence de la prise d'hydrogène.

### **Caractérisation microstructurale de la couche ex- $\beta$**

Dans cette thèse, une corrélation entre la teneur en oxygène et la nano-dureté a été établie. Cette corrélation a été déterminée pour une plage de teneur allant de celle de la phase ex- $\beta$  jusqu'à celle de la phase  $\alpha(O)$ . Cependant, la corrélation entre la teneur en oxygène et la nano-dureté pour des teneurs en oxygène inférieures à 1% massique n'est pas connue. Cette corrélation pourrait être établie en effectuant la mesure de teneur en oxygène et la nano-indentation au même endroit dans la couche ex- $\beta$ .

La présence des incursions  $\alpha(O)$  dans la couche ex- $\beta$  entraîne une hétérogénéité microstructurale circonférentielle de la couche ex- $\beta$ , qui peut présenter une hétérogénéité circonférentielle de la distribution de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$ . Dans cette thèse la distribution de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  des gaines oxydées a été caractérisée par deux filiations qui traversent l'épaisseur de la couche ex- $\beta$ . Pour les gaines oxydées dont la couche ex- $\beta$  présente des incursions  $\alpha(O)$ , les deux filiations ont été effectuées de sorte qu'elles traversent une ou plusieurs incursions  $\alpha(O)$ . La teneur en oxygène dans des zones loin des incursions  $\alpha(O)$  n'est pas connue. Des filiations de teneur en oxygène dans des zones qui n'ont pas d'incursion  $\alpha(O)$  pourraient être effectuées pour avoir une connaissance plus complète sur la distribution de la teneur en oxygène dans la couche ex- $\beta$  en présence d'incursions  $\alpha(O)$ .

Les techniques d'observation utilisées dans cette thèse ne permettent d'observer les incursions  $\alpha(O)$  dans la couche ex- $\beta$  qu'en 2D. Cependant, pour connaître le mécanisme de la formation des incursions  $\alpha(O)$ , il est nécessaire de connaître la forme et la distribution des incursions  $\alpha(O)$  dans l'espace 3D. La technique de tomographie serait une technique potentielle pour caractériser la distribution dans l'espace 3D des incursions  $\alpha(O)$ .

### **Modélisation**

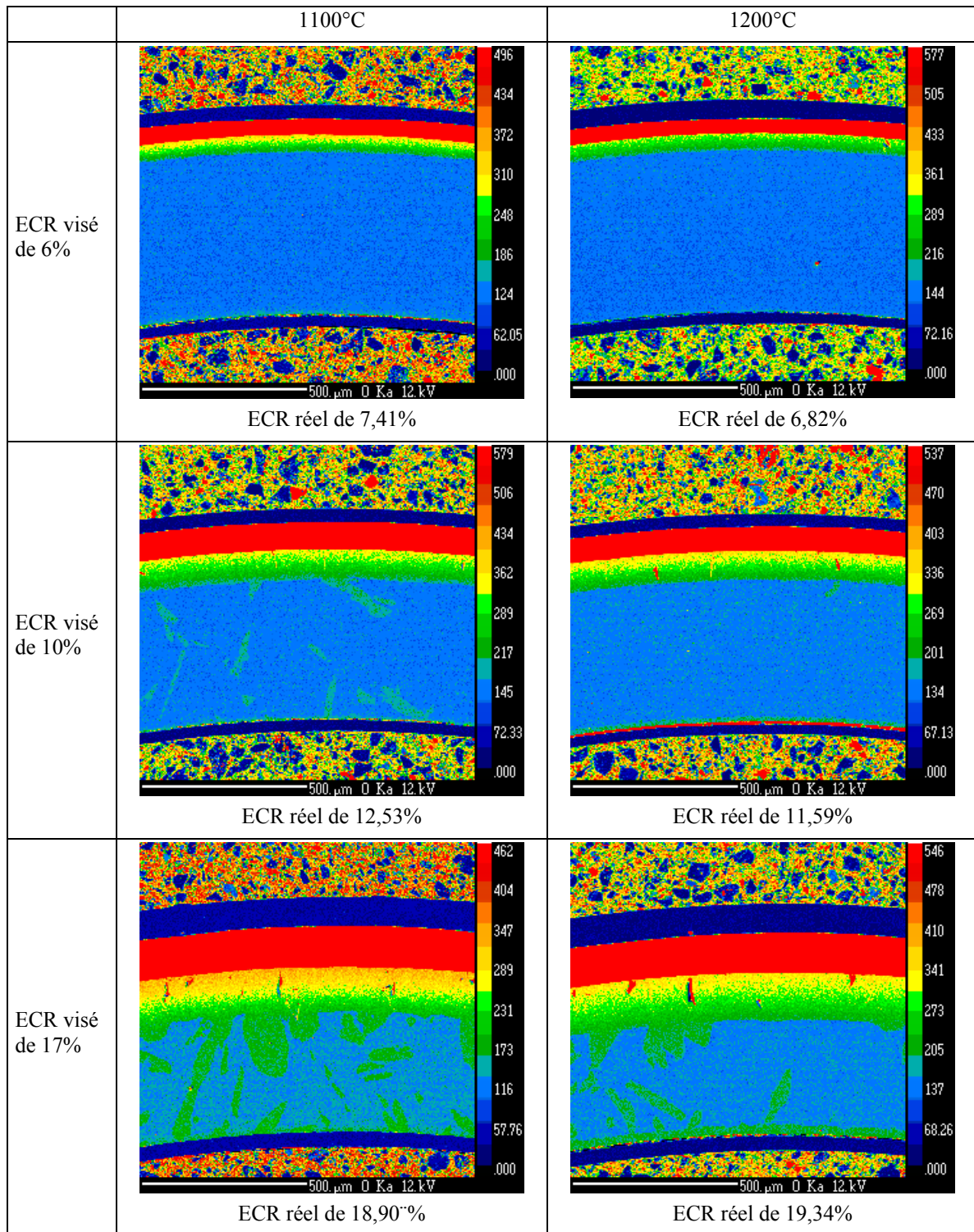
La modélisation pourrait être affinée en tenant compte des gradients de teneur en oxygène dans la gaine en utilisant le lien entre la teneur en oxygène et le comportement mécanique.

L'effet des incursions  $\alpha(O)$  sur le comportement de la couche ex- $\beta$  pourra également être étudié de manière plus précise.

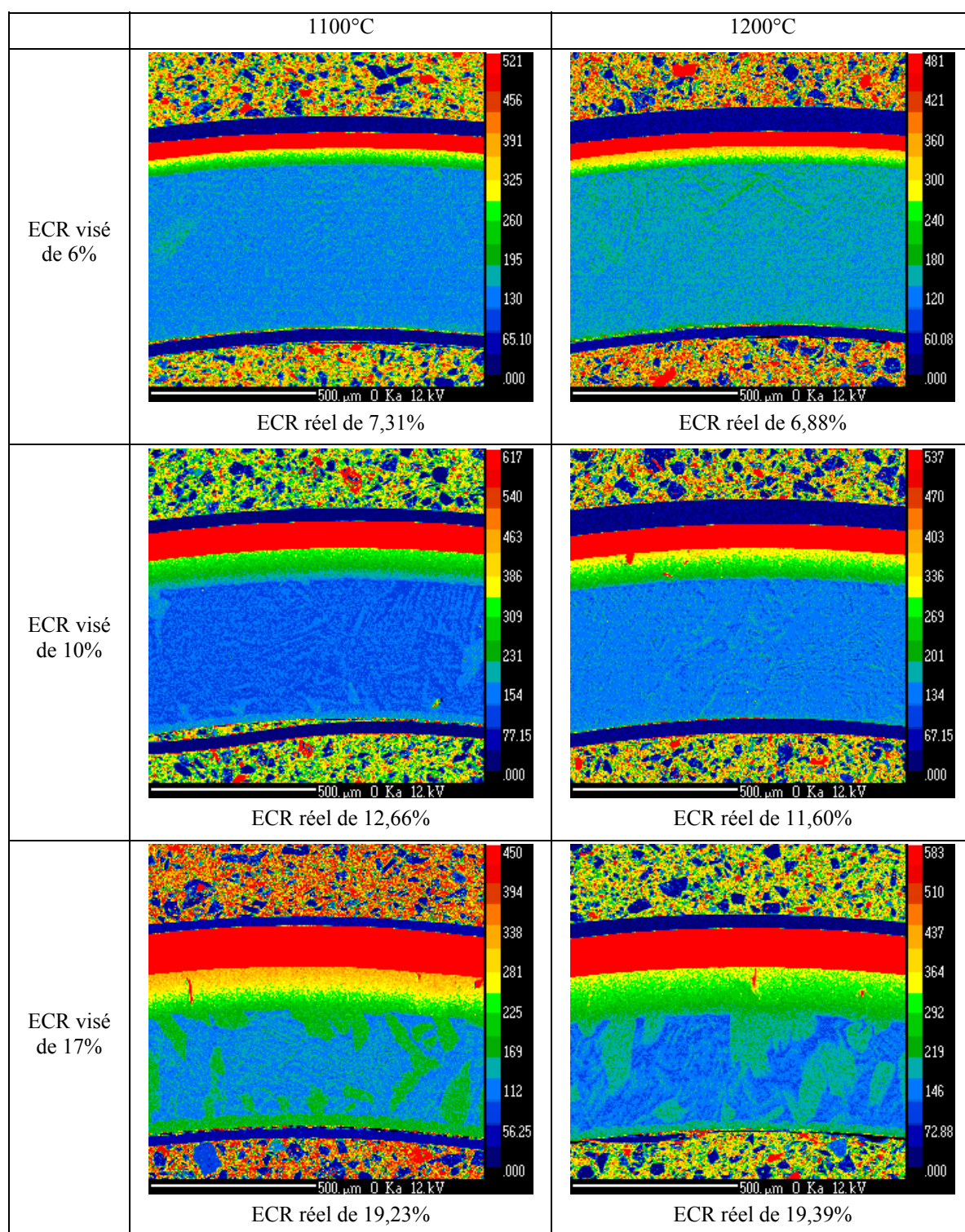




## A Cartographie de teneur en oxygène



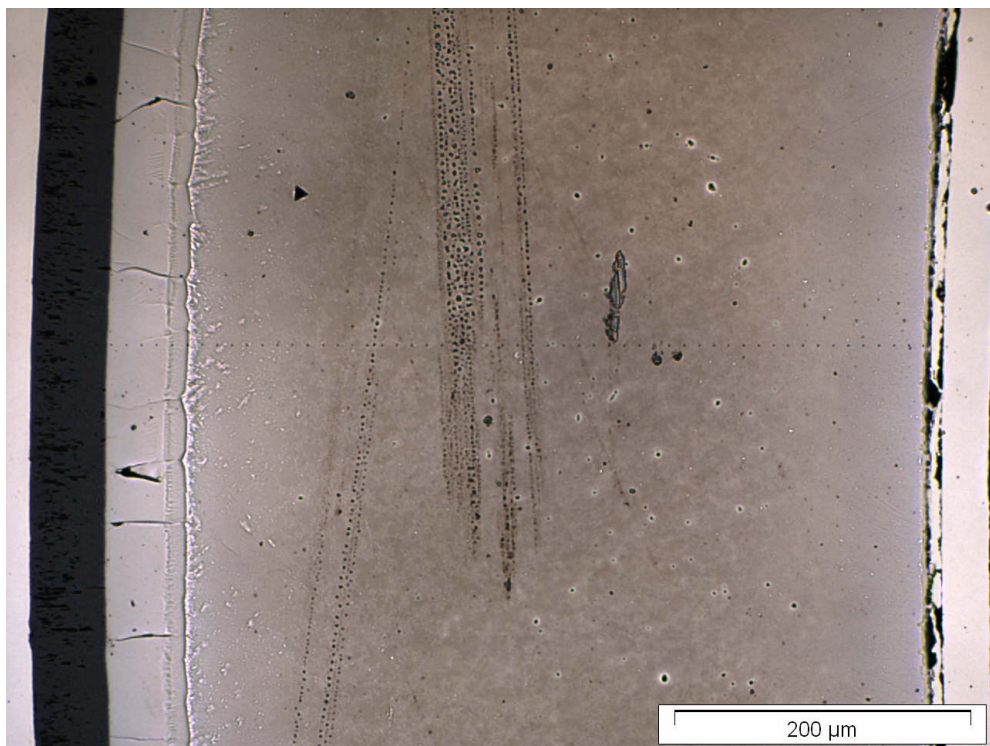
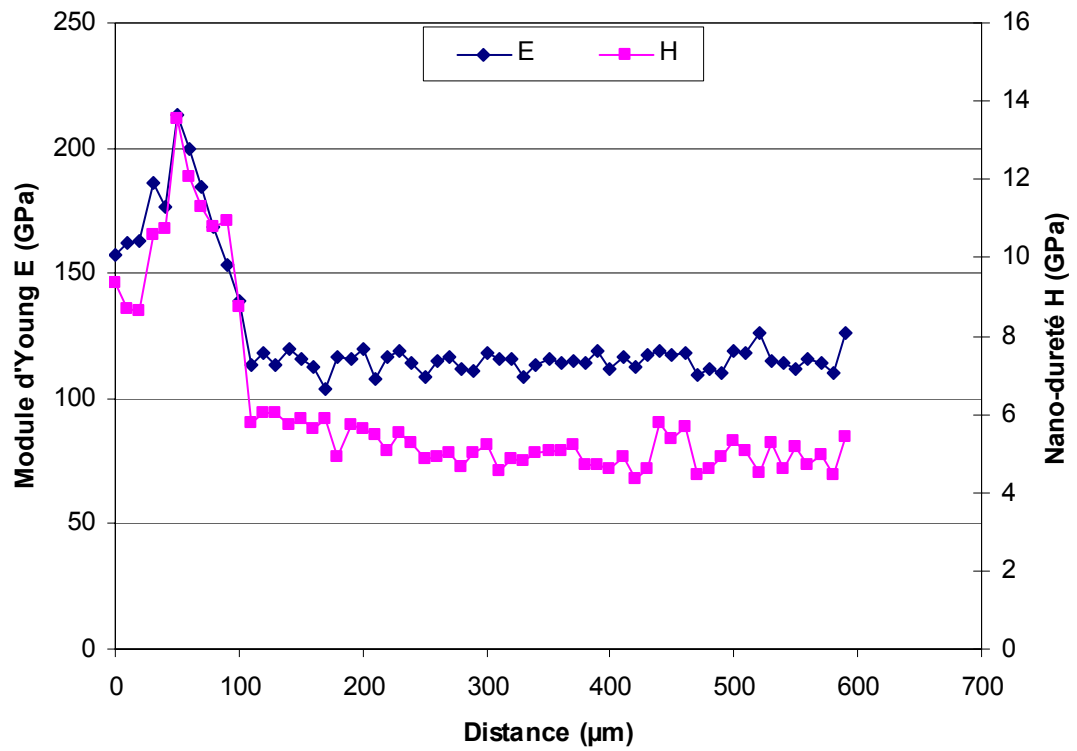
Gaines oxydées puis trempées



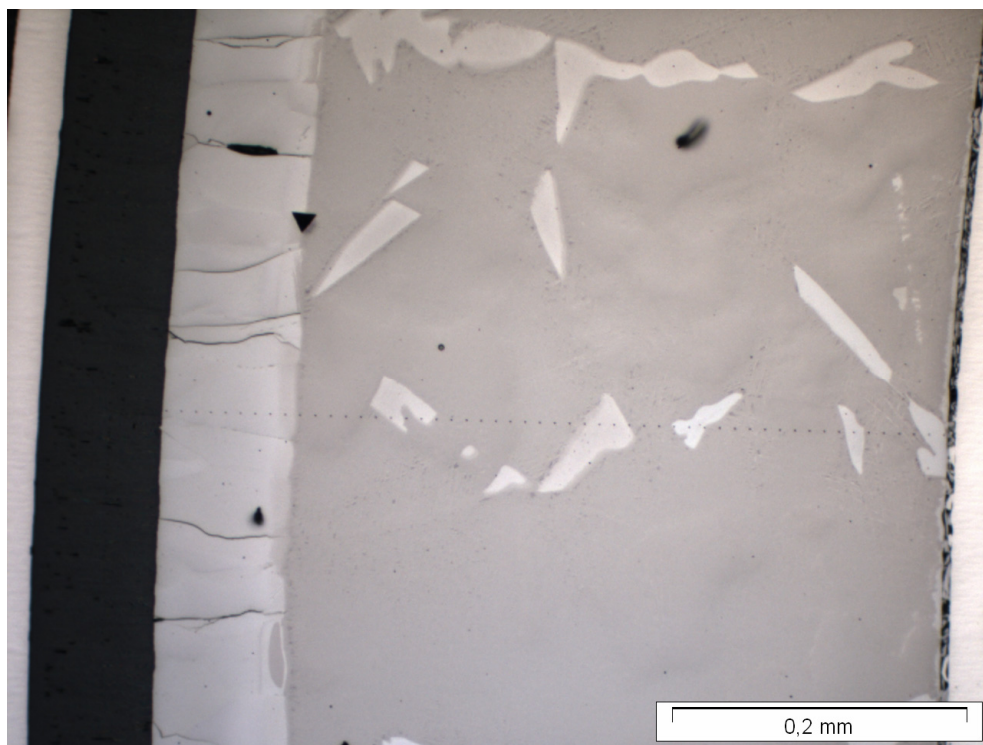
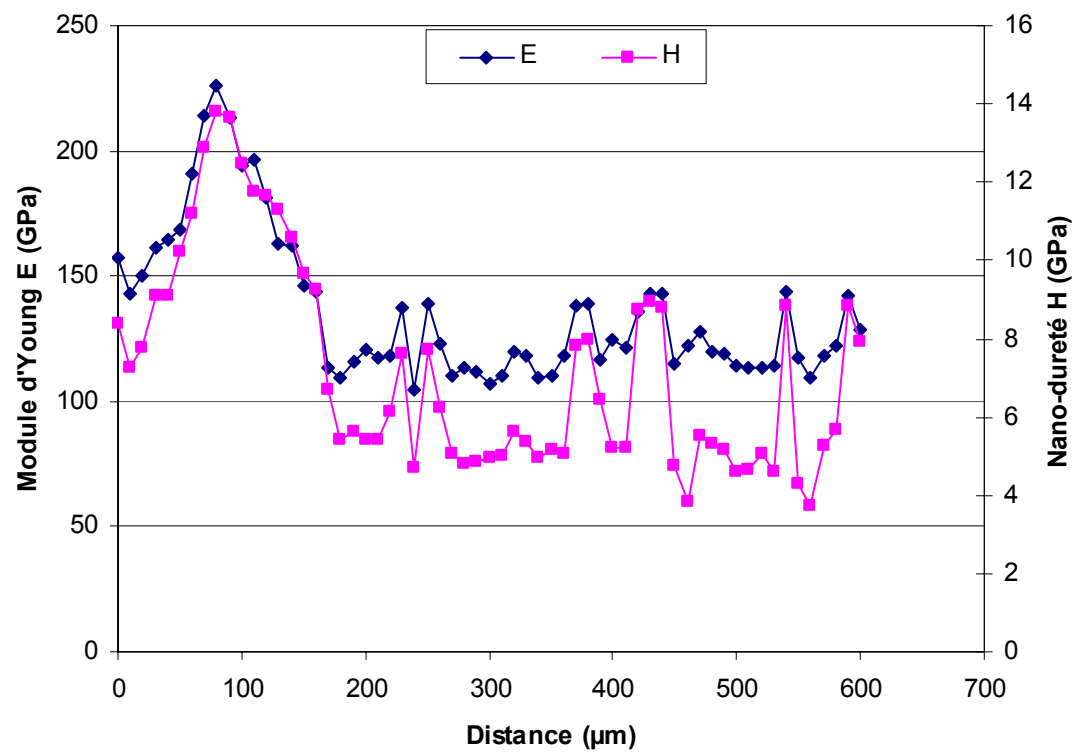
Gaines oxydées puis refroidies à l'air



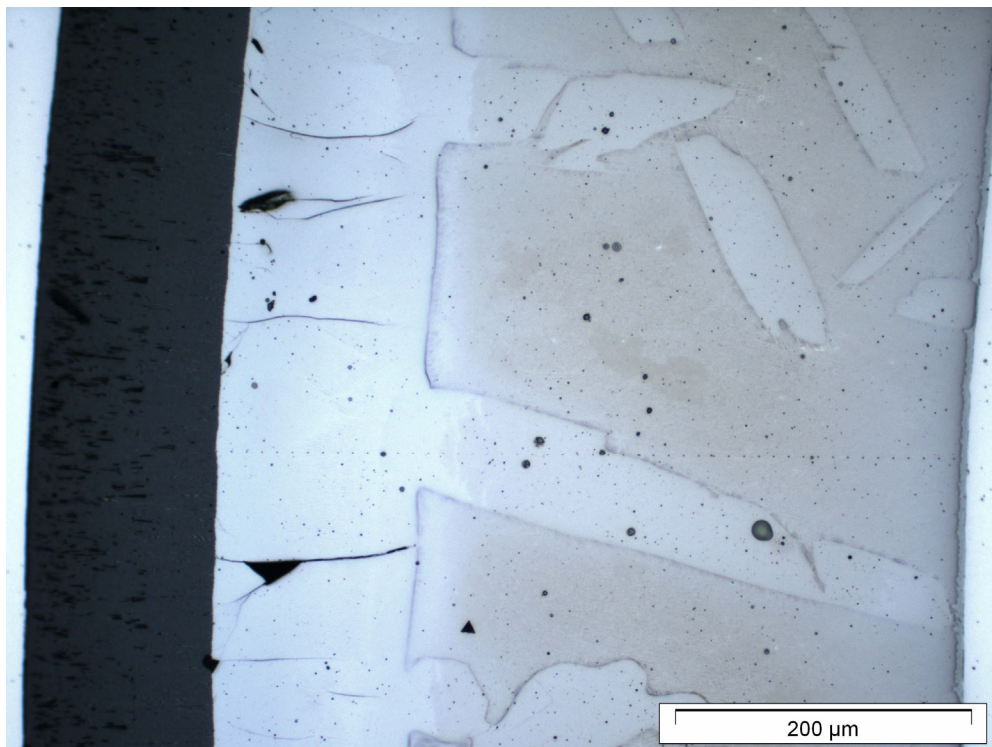
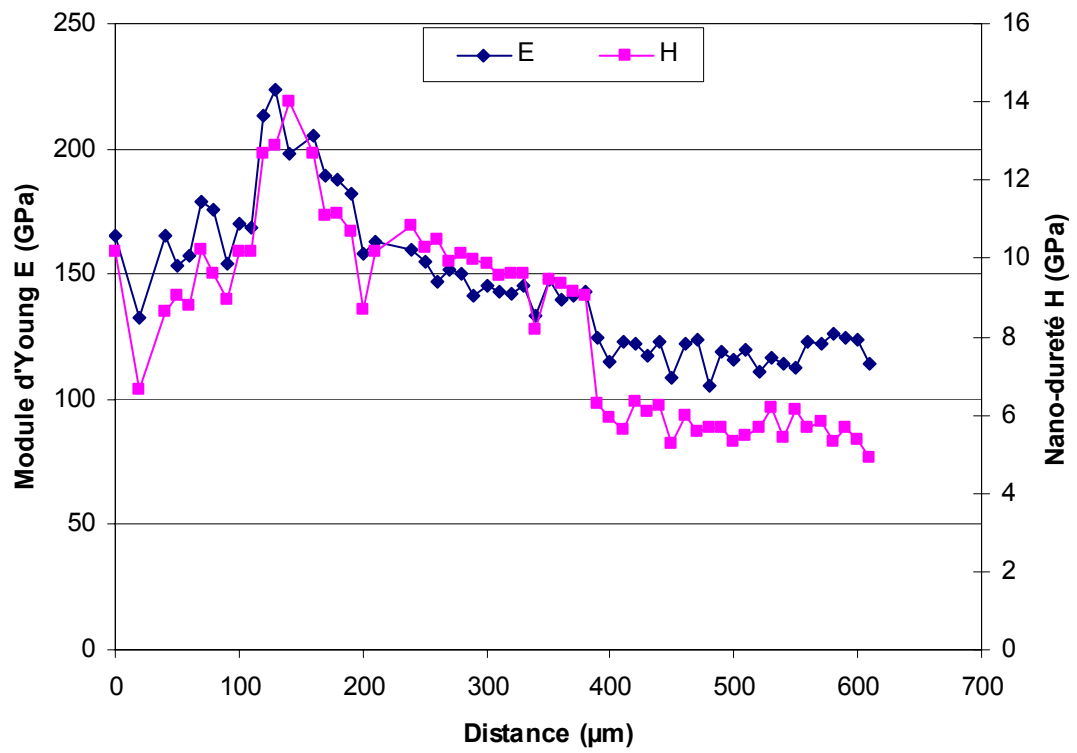
## B Résultats de la nanoindentation



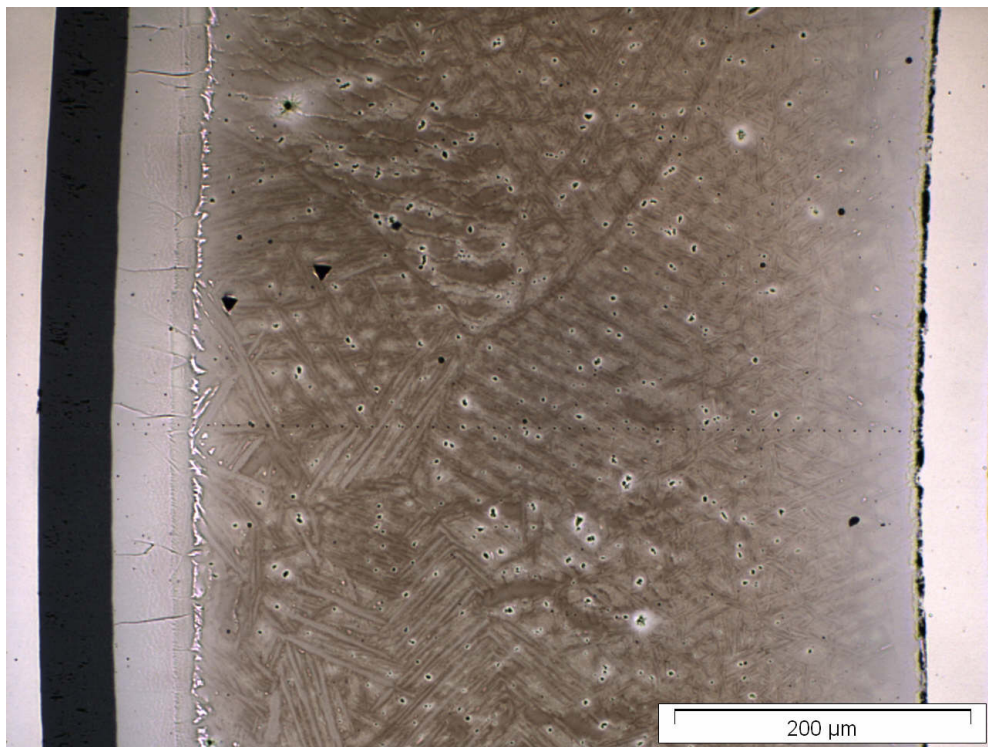
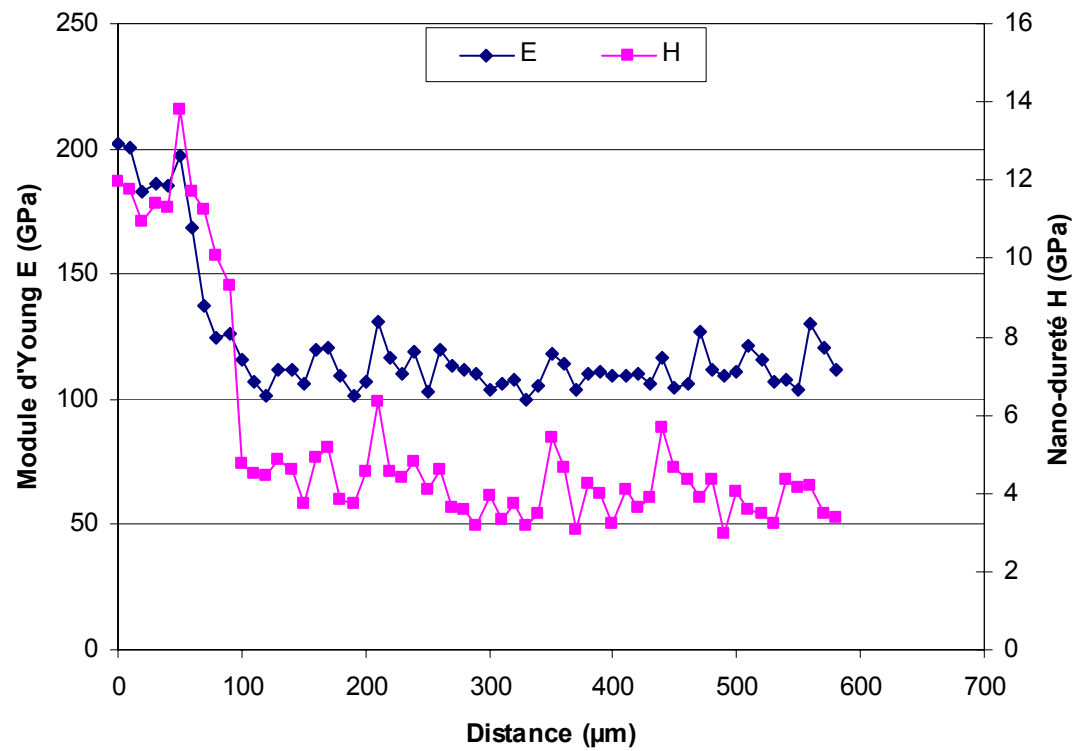
7,41% d'ECR à 1100°C trempé



12,53% d'ECR à 1100°C trempé

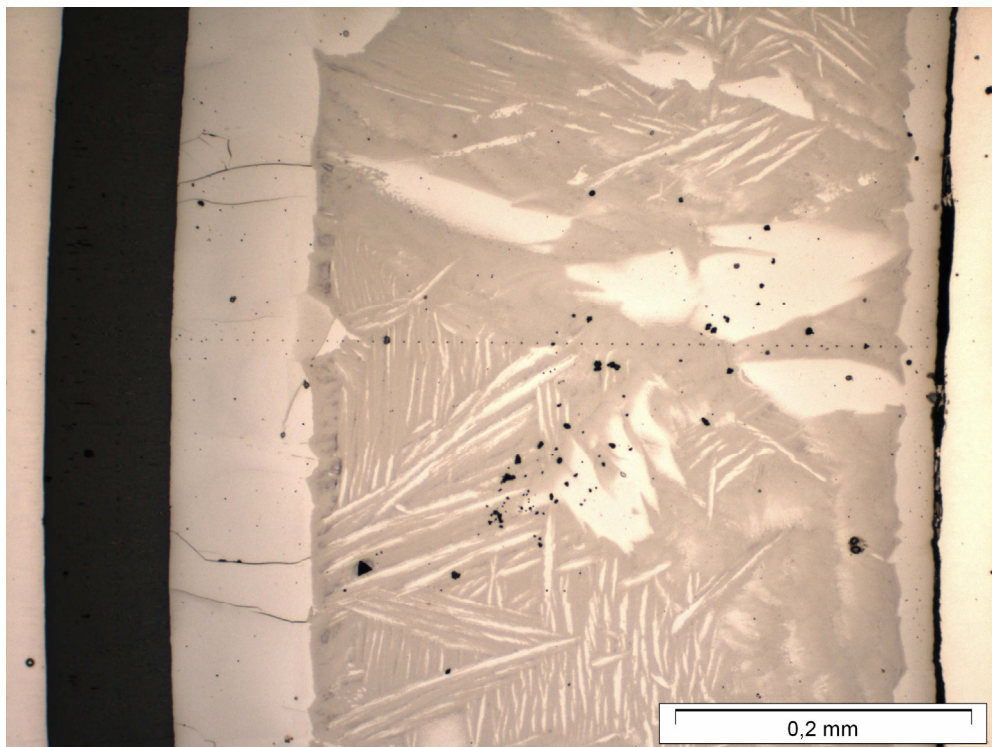
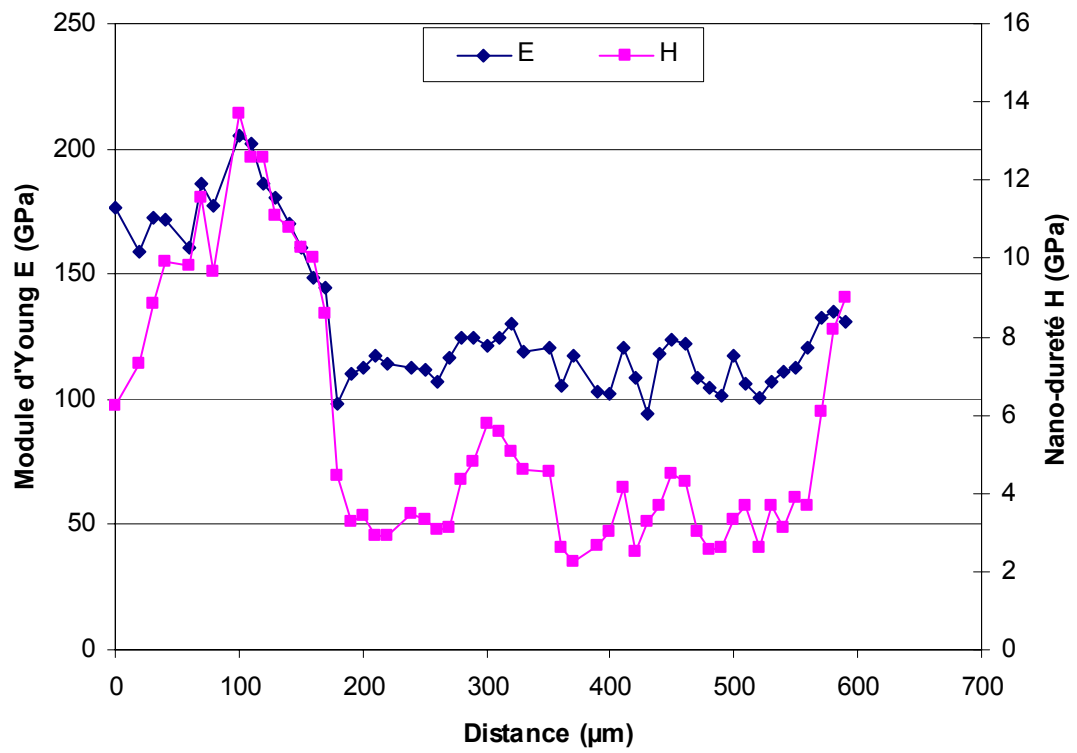


18,90% d'ECR à 1100°C trempé

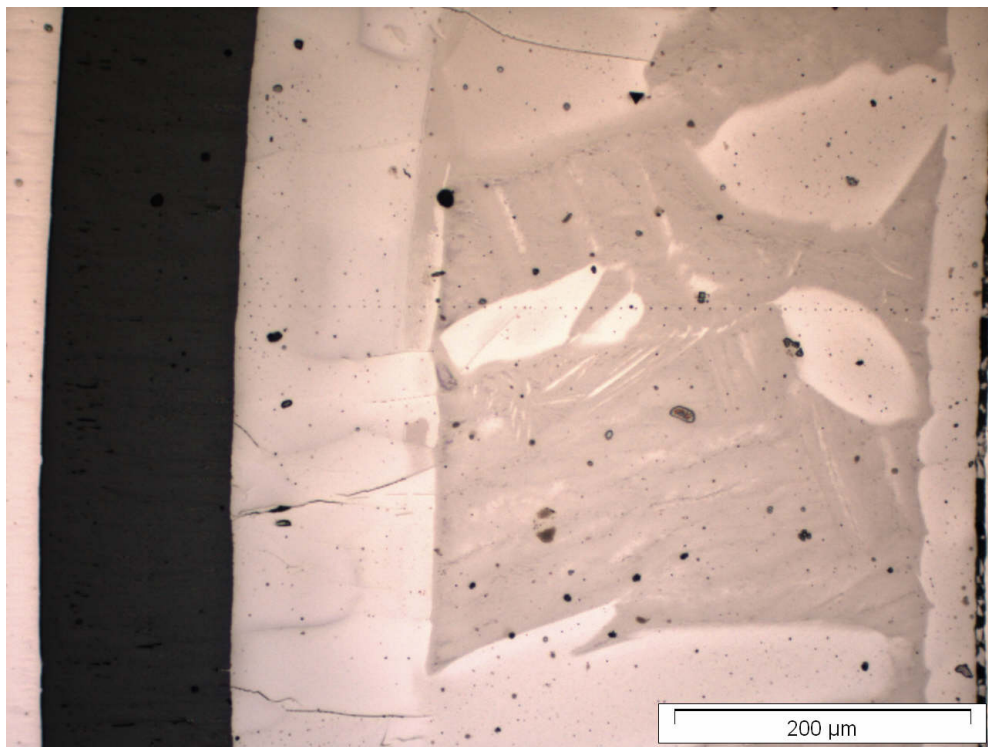
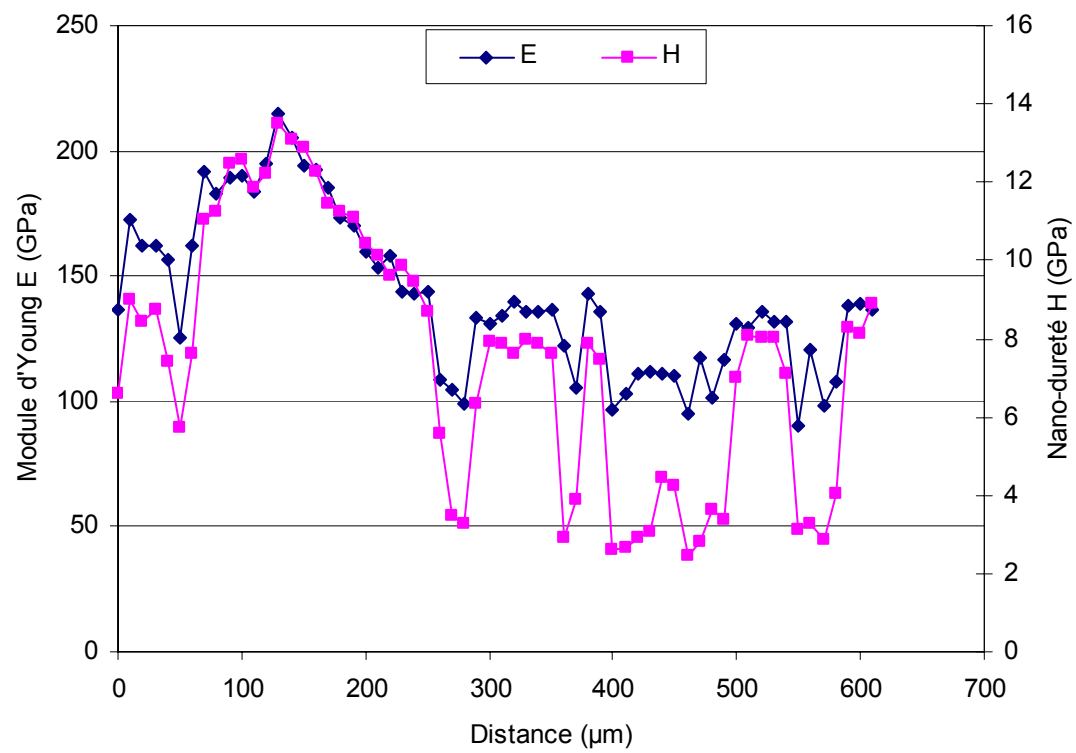


7,31% d'ECR à 1100°C refroidi à l'air



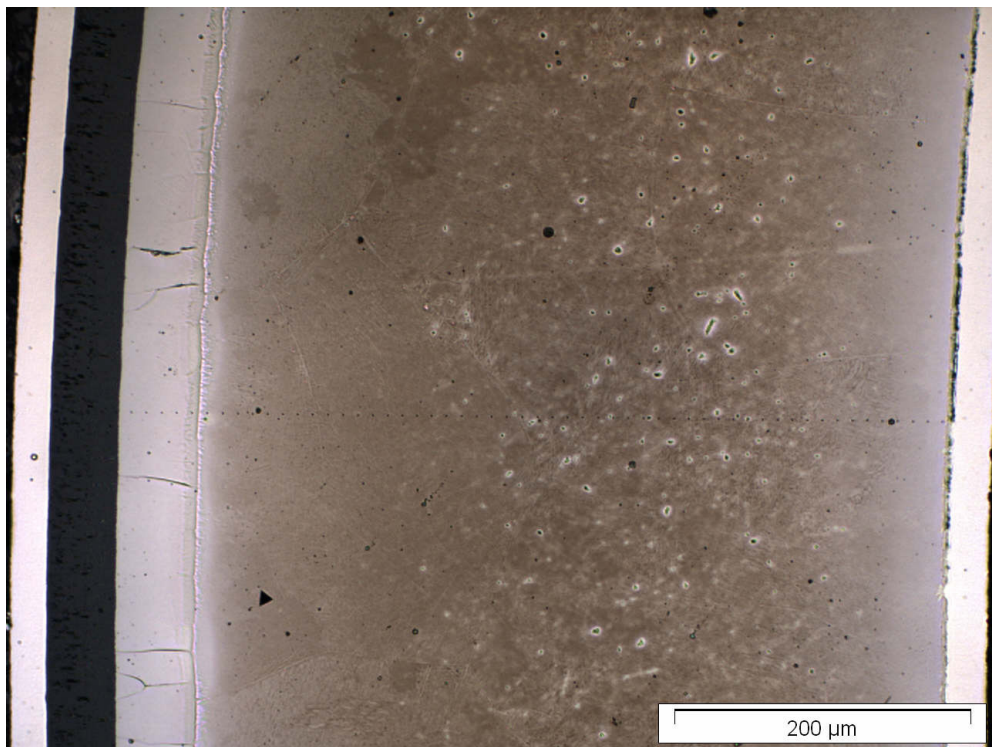
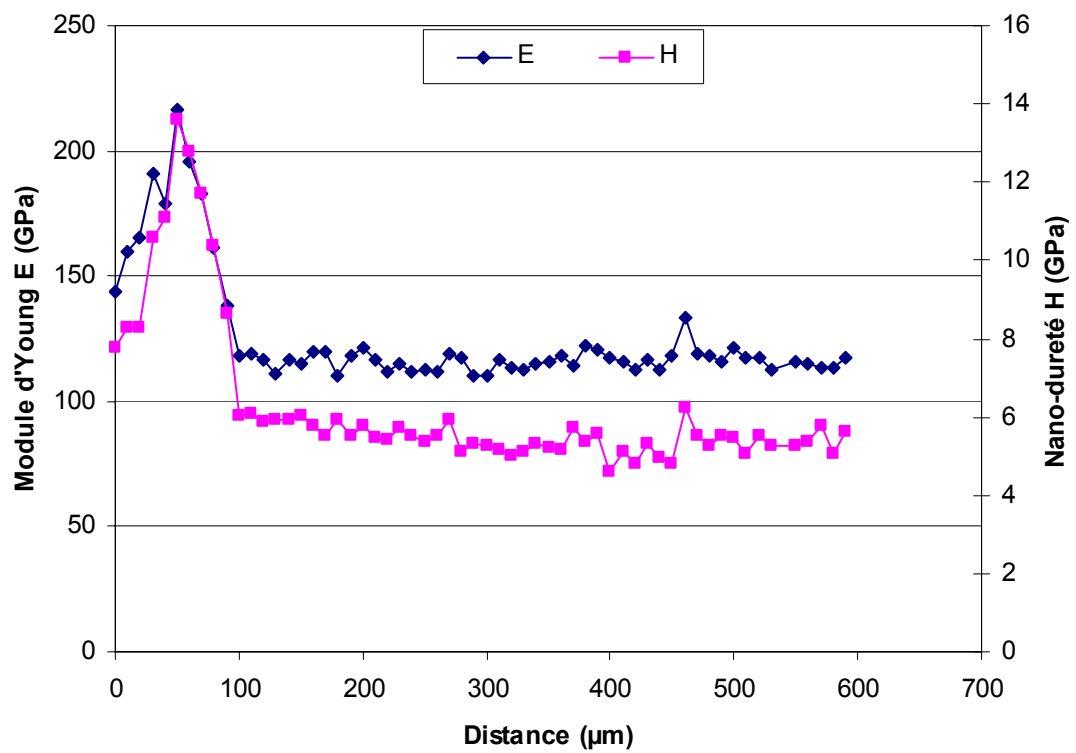


12,66% d'ECR à 1100°C refroidi à l'air

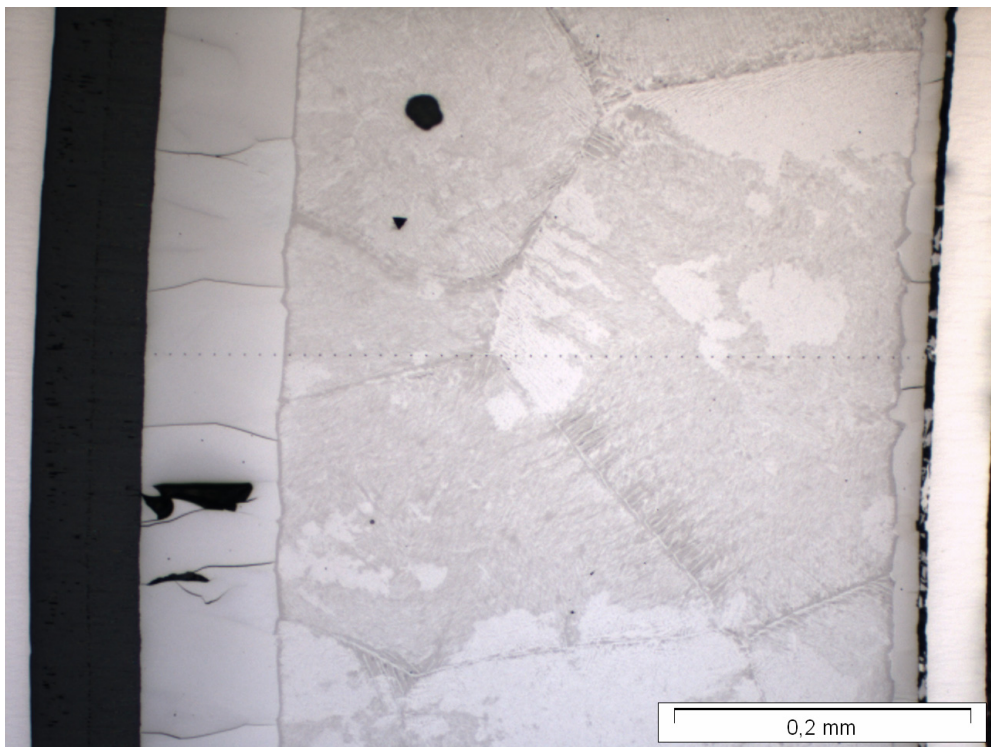
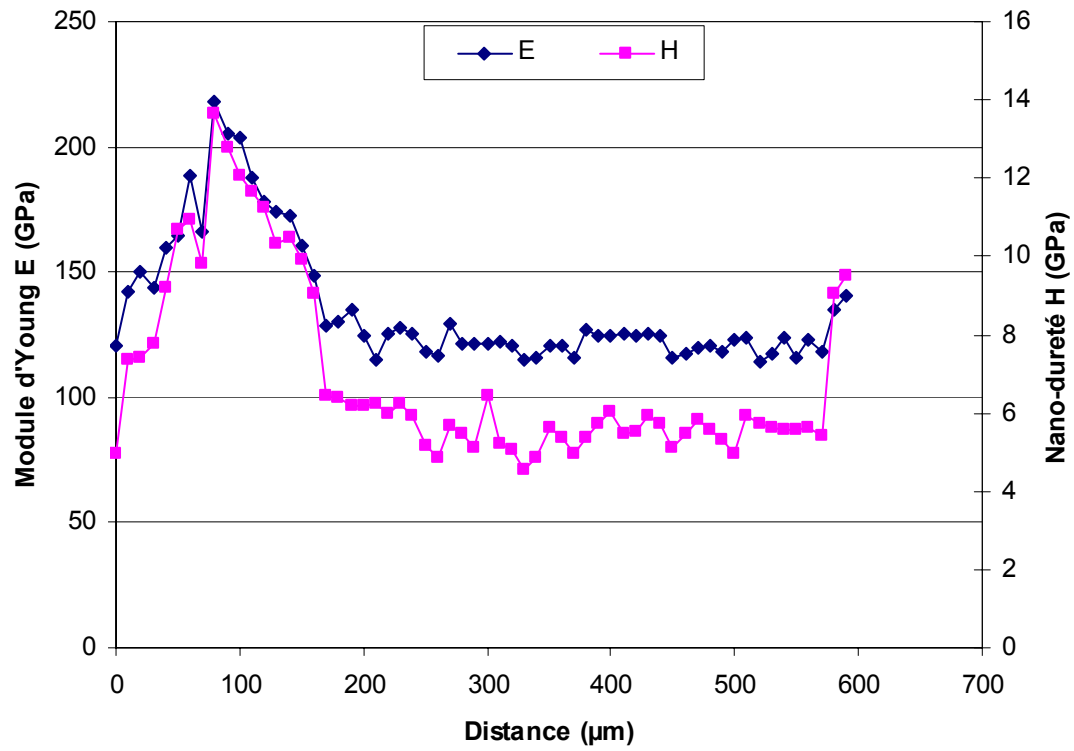


19,23% d'ECR à 1100°C refroidi à l'air

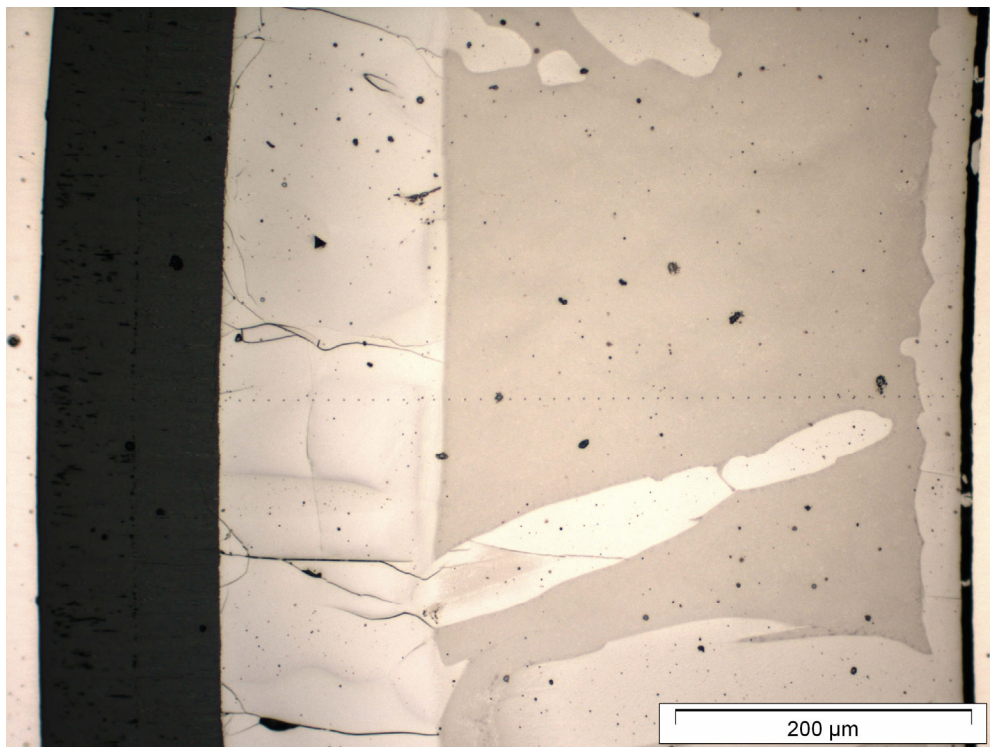
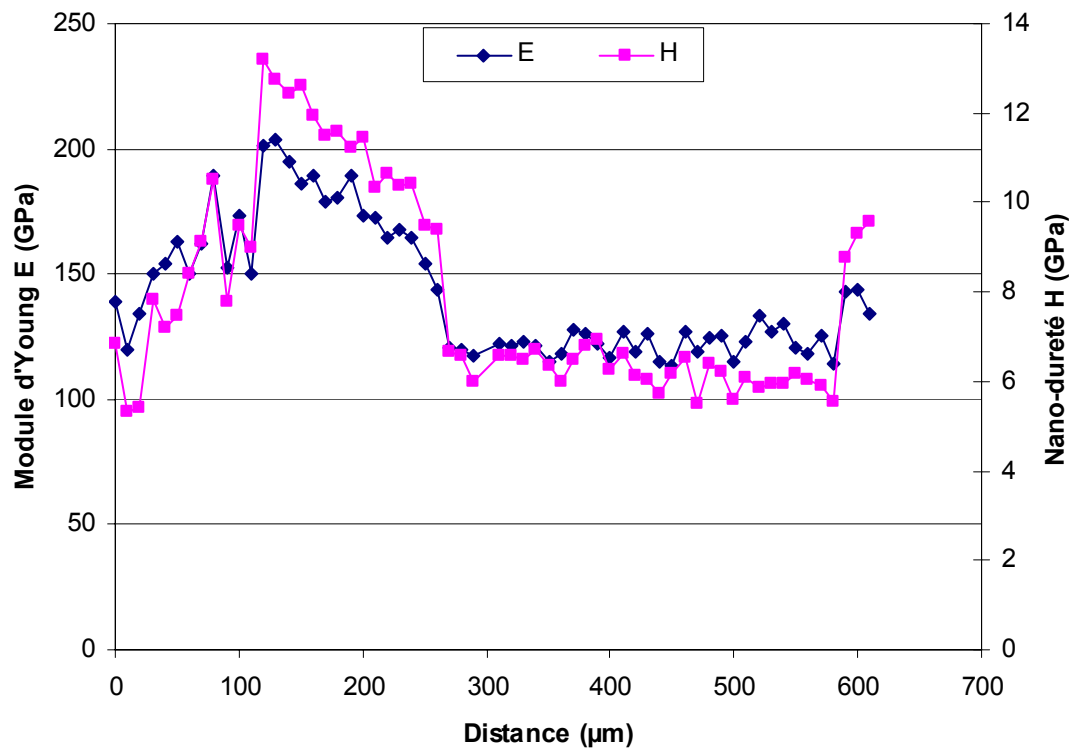




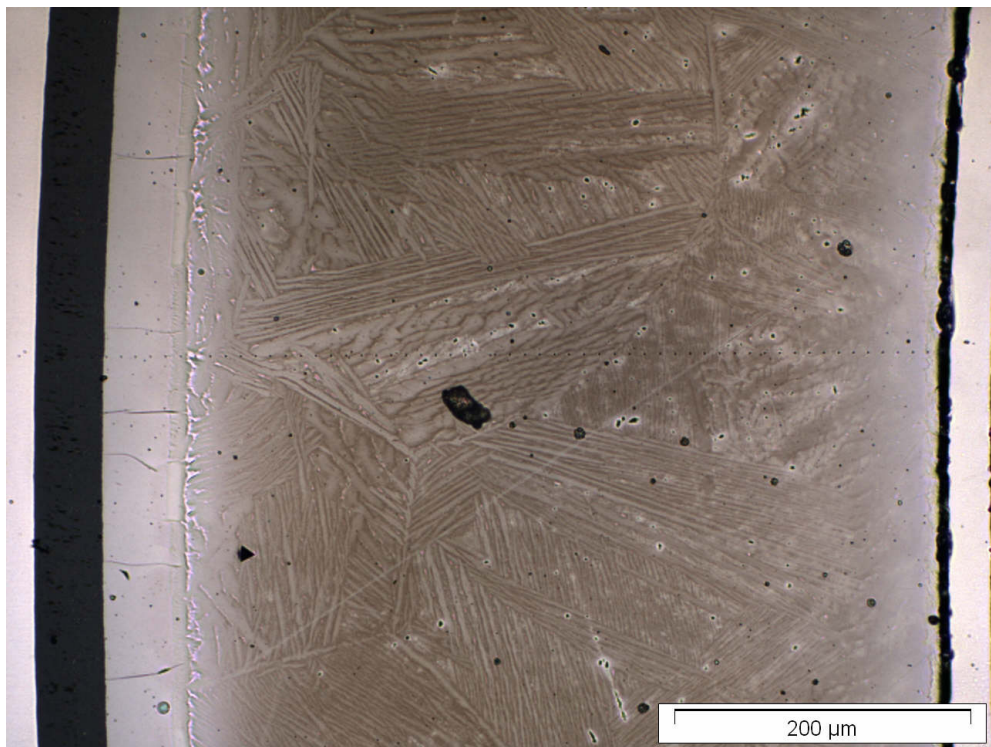
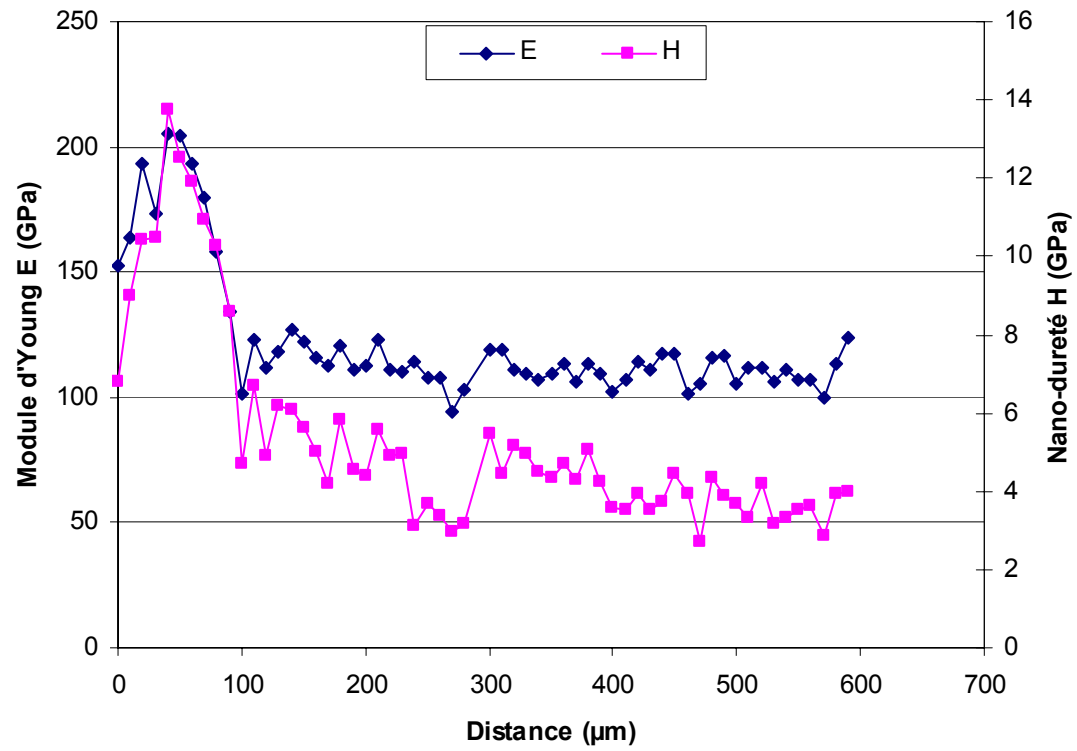
6,82% d'ECR à 1200°C trempé



11,59% d'ECR à 1200°C trempé

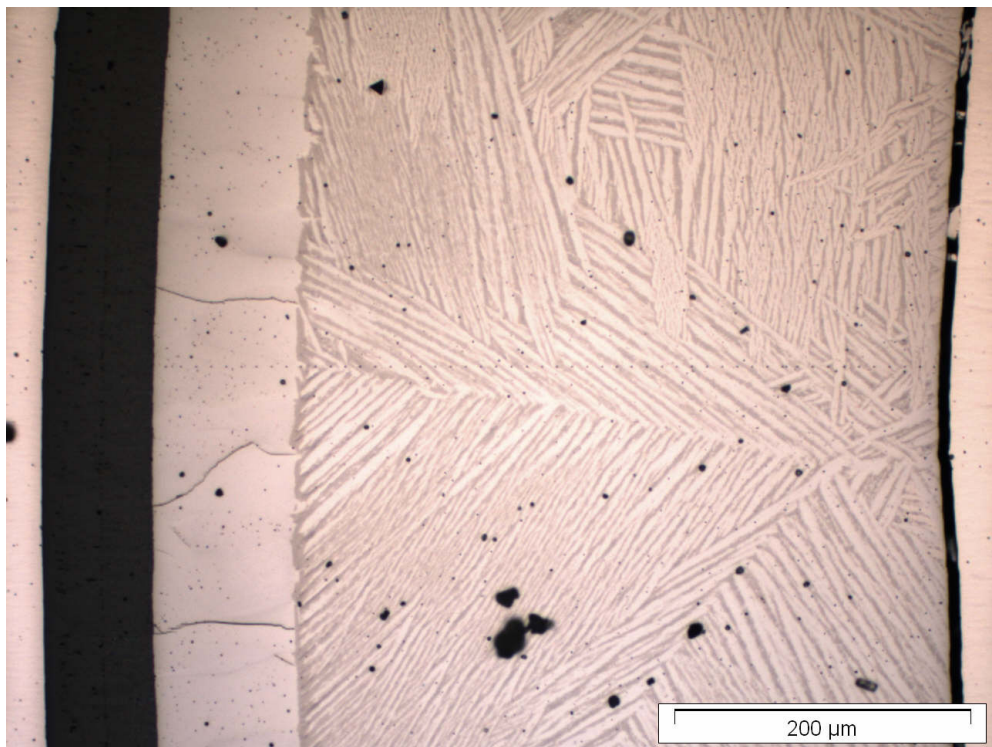
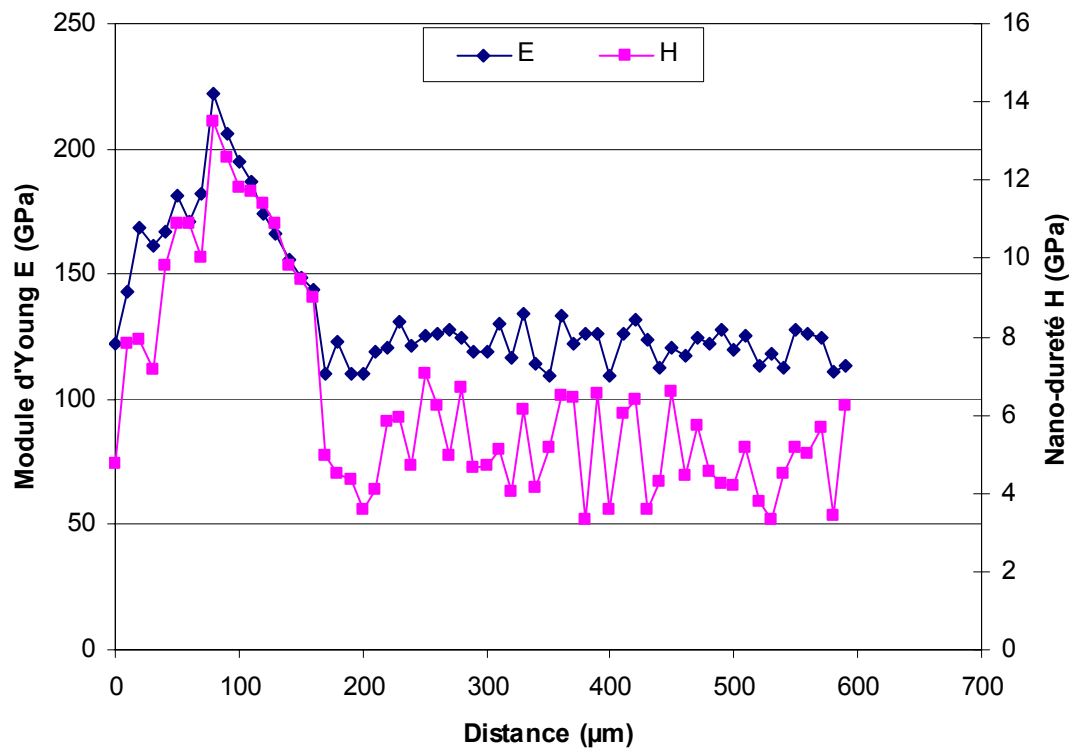


19,34% d'ECR à 1200°C trempé

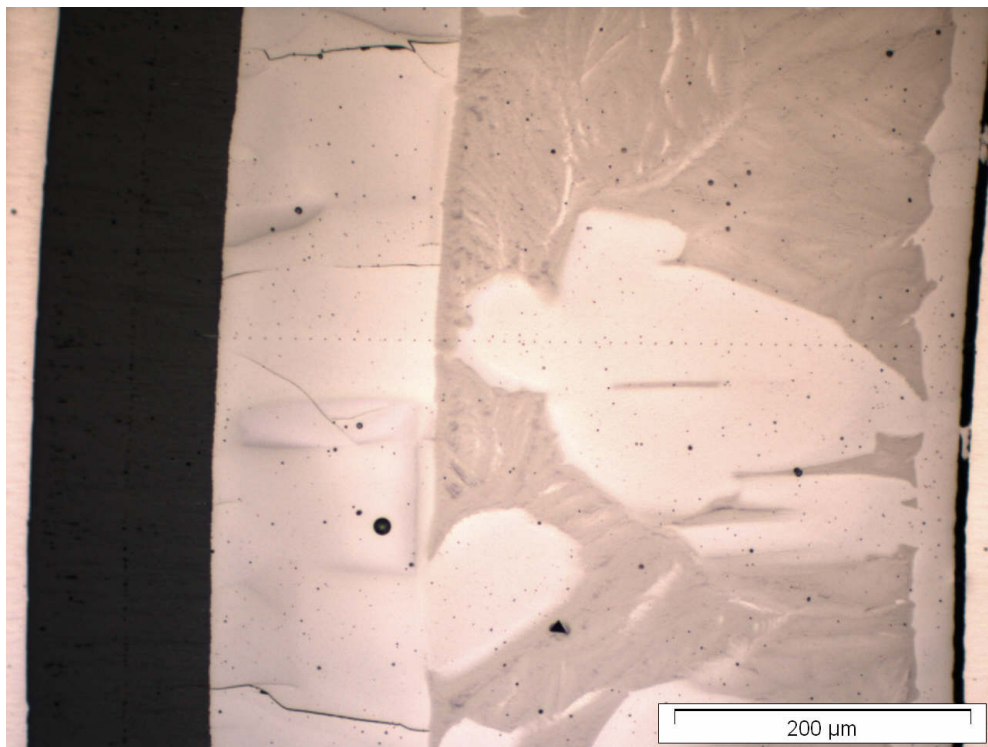
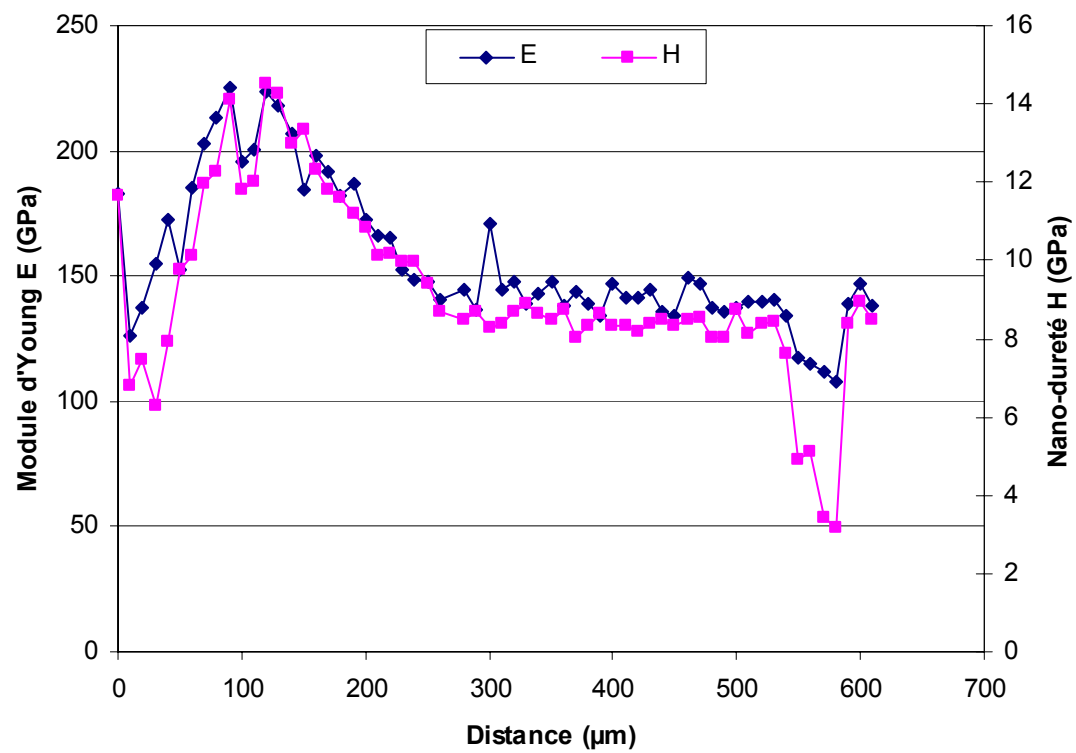


6,88% d'ECR à 1200°C refroidi à l'air





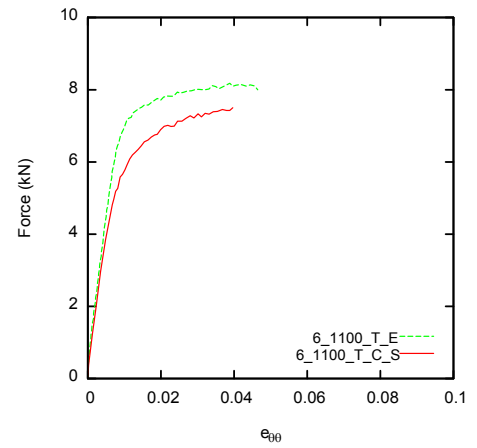
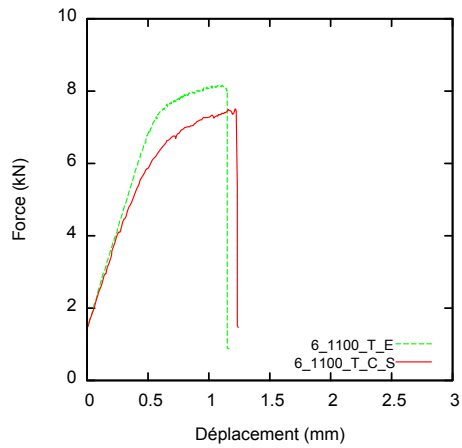
11,60% d'ECR à 1200°C refroidi à l'air



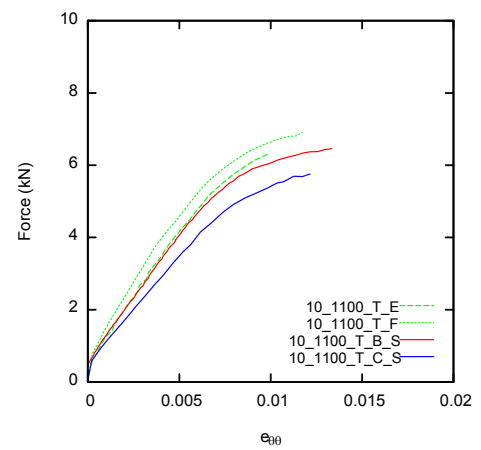
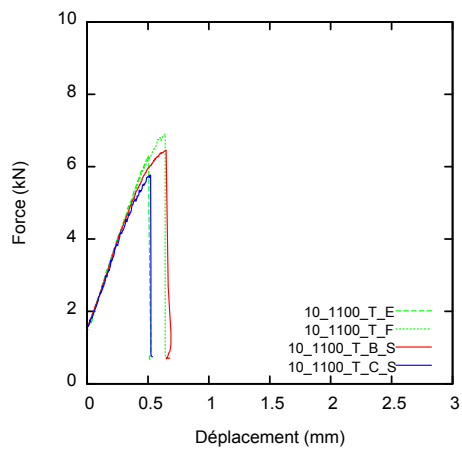
19,39% d'ECR à 1200°C refroidi à l'air

## C Courbes de l'essai EDC sur gaines sablées

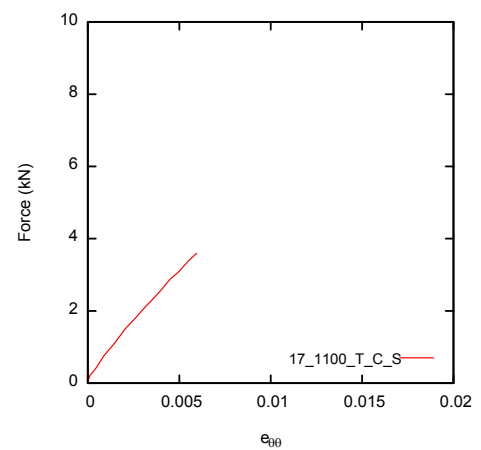
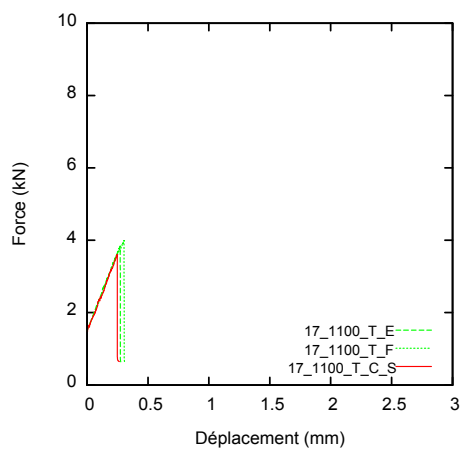
ECR réel  
7,41%



ECR réel  
12,53%

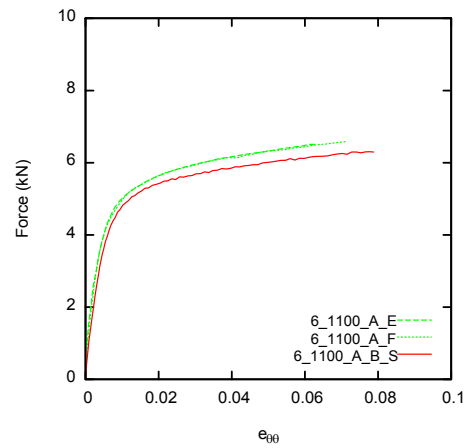
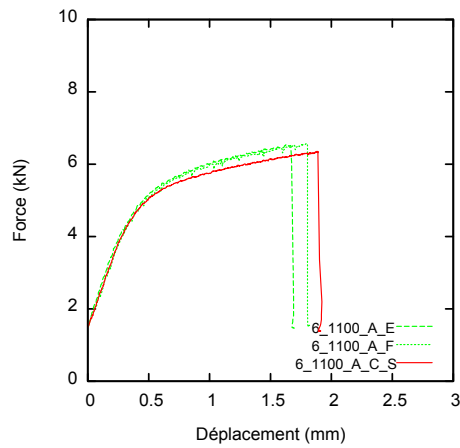


ECR réel  
18,90%

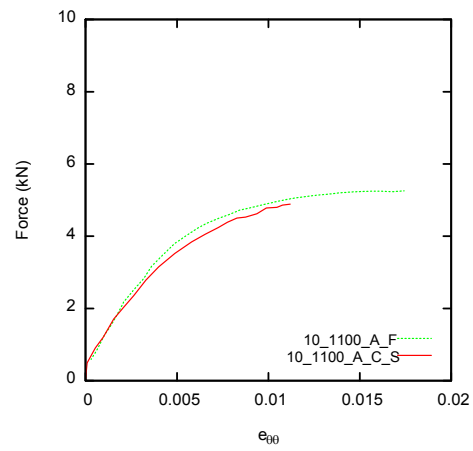
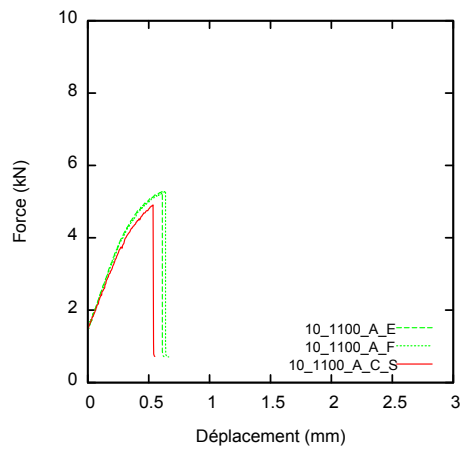


Gaines oxydées à 1100°C puis trempées

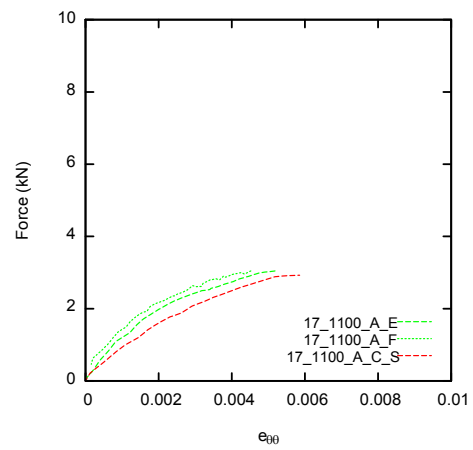
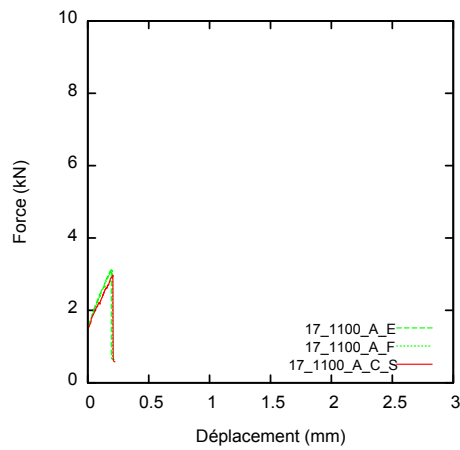
ECR réel  
7,31%



ECR réel  
12,66%



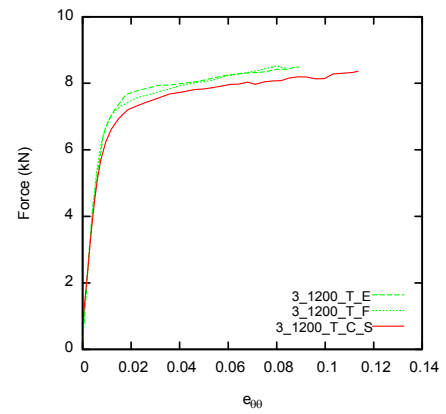
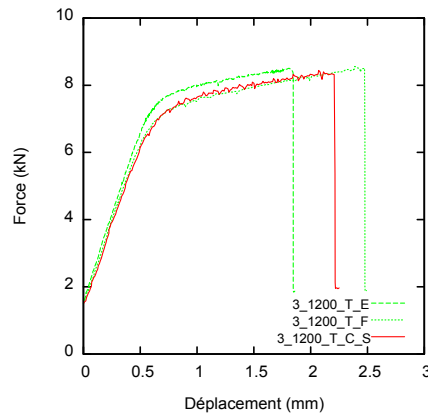
ECR réel  
19,23%



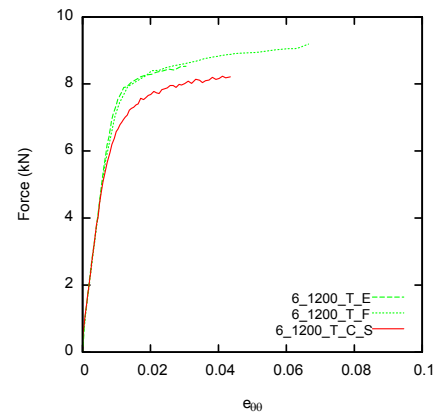
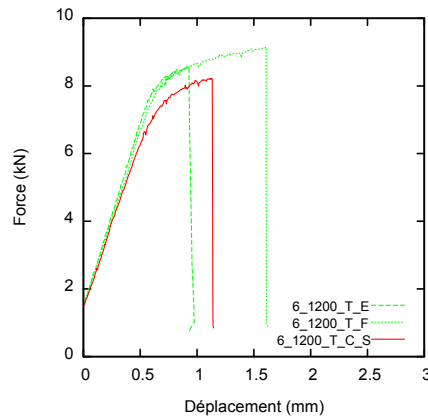
Gaines oxydées à 1100°C puis refroidies à l'air



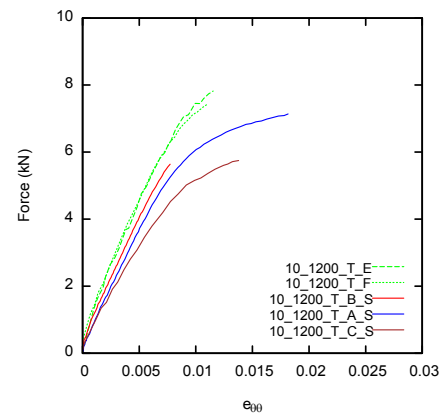
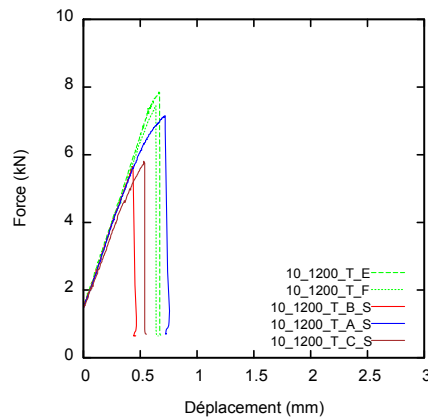
ECR réel  
3,37%



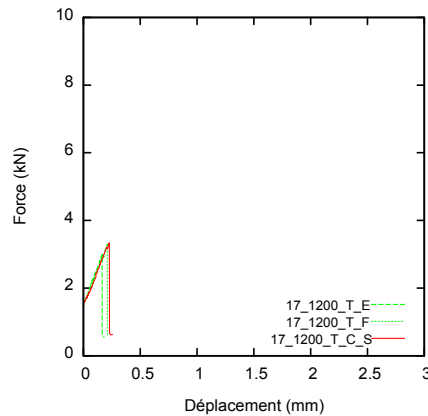
ECR réel  
6,82%



ECR réel  
11,59%

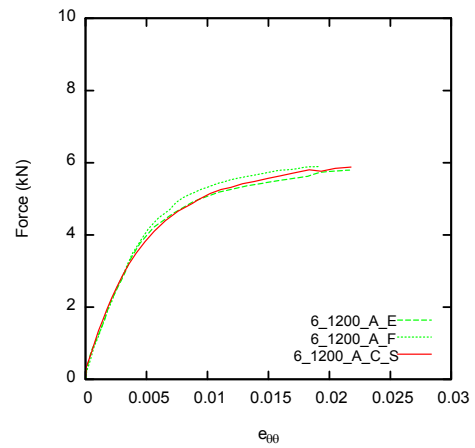
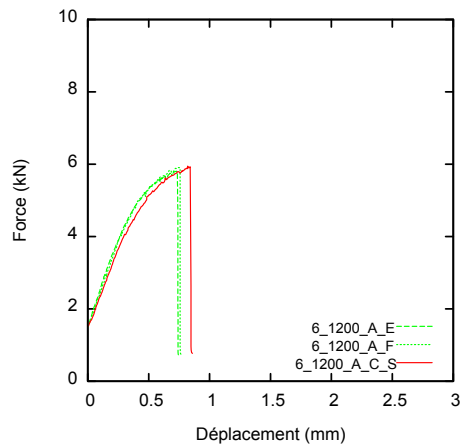


ECR réel  
19,34%

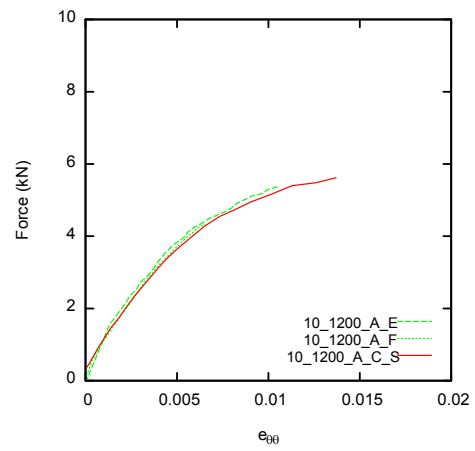
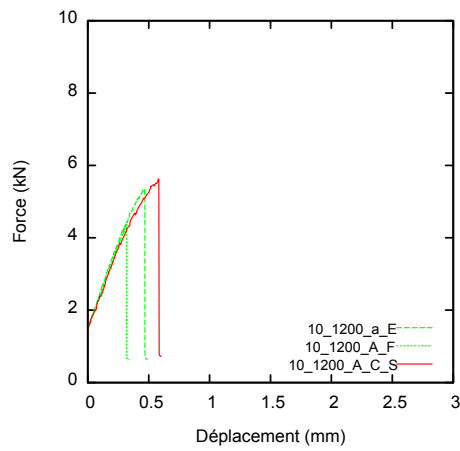


Gaines oxydées à 1200°C puis trempées

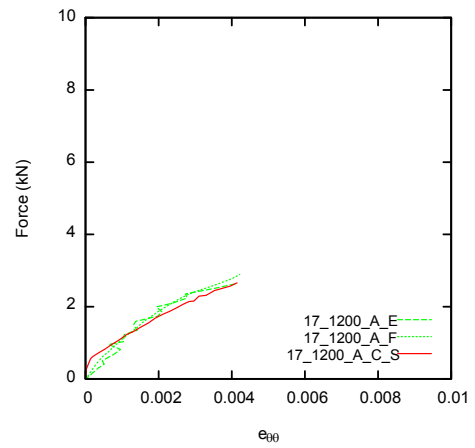
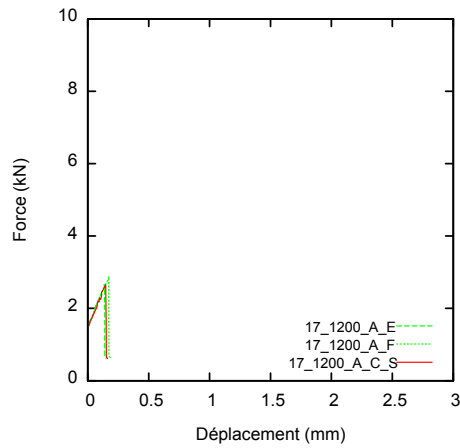
ECR réel  
6,88%



ECR réel  
11,60%












ECR réel  
19,39%













Gaines oxydées à 1200°C puis refroidies à l'air

## D Photos des gaines oxydées rompues dans l'essai EDC

	1100°C	1200°C	
ECR visé 3%		 3_1200_T_E	 3_1200_T_F
ECR visé 6%	 6_1100_T_E	 6_1200_T_E	
ECR visé 10%	 10_1100_T_E	 10_1200_T_E	 10_1200_T_F
ECR visé 17%	 17_1100_T_E	 17_1200_T_E	

Gaines trempées

	1100°C		1200°C	
ECR visé 6%	 6_1100_A_E	 6_1100_A_F	 6_1200_A_E	
ECR visé 10%	 10_1100_A_E		 10_1200_A_E	 10_1200_F
ECR visé 17%	 17_1100_A_E	 17_1100_A_F	 17_1200_A_E	 17_1200_A_F

Gaines refroidies à l'air

## E Essai de compression sur Téflon

Le comportement du pion en Téflon a été caractérisé par un essai de compression effectué en appliquant la compression avec les pistons de l'essai EDC. La même vitesse de compression que pour l'essai EDC sur les gaines oxydées ( $2,5 \times 10^{-3}$  mm/s) a été appliquée. Le pion a un diamètre de 8,3 mm et une hauteur de 12,5 mm. Le diamètre de la surface de contact des pistons est de 8,3 mm. Avant l'essai de compression, un mouchetis est appliqué sur la surface extérieure du pion, et les déformations de Green-Lagrange axiale et circonférentielle  $e_{zz}$  et  $e_{\theta\theta}$  sont calculées par stéréo-corrélation d'images à partir des photos prises au cours de l'essai.

Le module d'Young  $E=593\text{MPa}$  est déterminé à partir de la contrainte axiale ( $F/S_0$ ) et de la déformation axiale  $e_{zz}$  (Figure E-1a). Le coefficient de Poisson  $\nu=0,47$  est déterminé par la relation entre  $e_{\theta\theta}$  et  $e_{zz}$  (Figure E-1b).

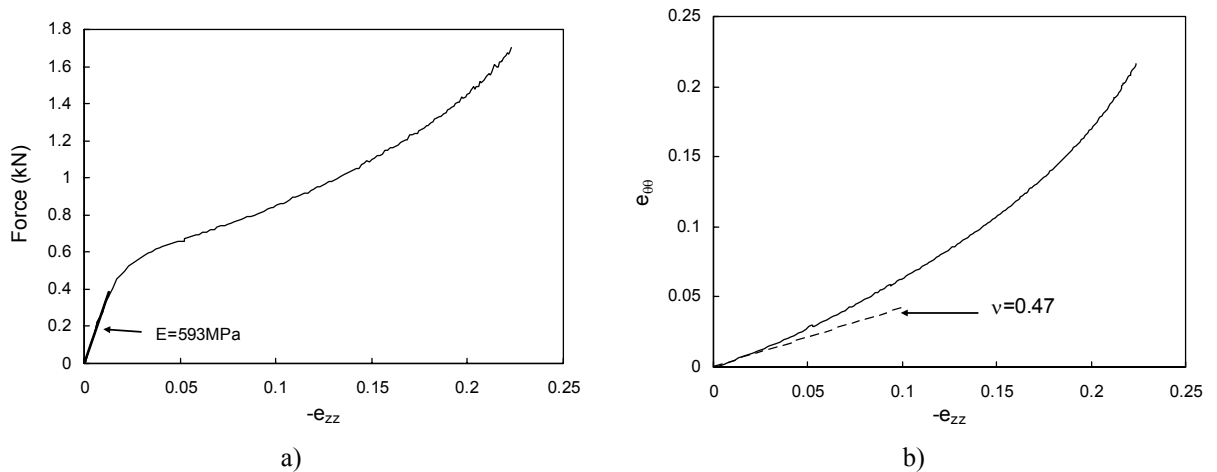


Figure E-1: Courbes de l'essai de compression sur le pion.

Une modélisation élasto-plastique avec un écrouissage linéaire est proposée pour décrire le comportement du pion. La limite d'élasticité  $\sigma_y$  et le module d'écrouissage  $H$  qui décrivent l'écrouissage sont déterminés par la simulation de l'essai de compression en éléments finis.

En prenant en compte l'axisymétrie et la symétrie par rapport au plan médian du pion, seul un demi de la géométrie est modélisé. Les éléments quadrangles quadratiques avec intégration réduite sont utilisés. La Figure E-2 montre le maillage et les conditions aux limites de la modélisation. La formulation aux grandes déformations et grandes rotations est utilisée pour le pion.

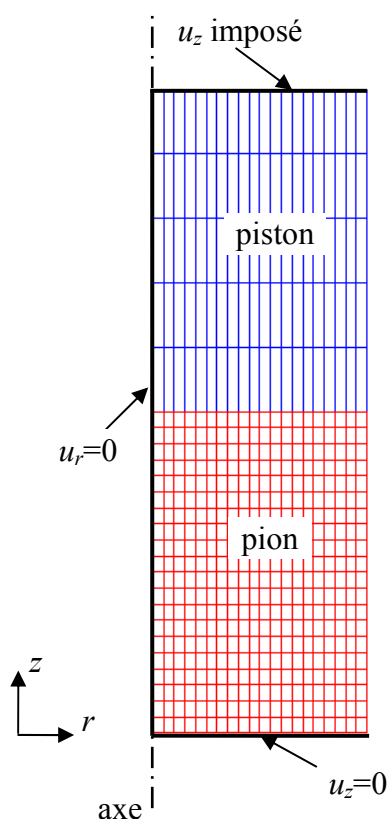


Figure E-2 : Maillage et conditions aux limites de la modélisation de l'essai de compression.

Le contact entre le pion et le piston est pris en compte. Le coefficient de frottement n'est pas connu. Comme le téflon a un coefficient de frottement très faible, dans un premier temps, le frottement n'est pas pris en compte.

La limite d'élasticité  $\sigma_y$  et le module d'écrouissage  $H$  sont recalés par la simulation à partir de la courbe force-déformation axiale (Figure E-3). Le recalage donne  $\sigma_y=9,37$  MPa et  $H=50,95$  MPa.

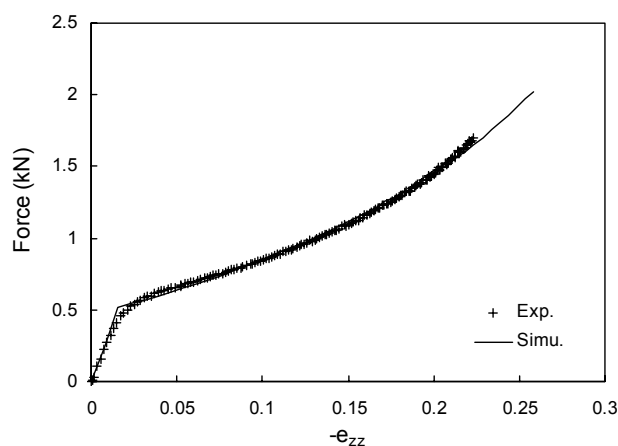


Figure E-3 : Recalage de  $\sigma_y$  et  $H$ .

Dans le processus de détermination de  $\sigma_y$  et  $H$ , le frottement entre le pion et le piston est négligé. Pour valider les paramètres déterminés, des coefficients de frottement  $\mu$  de 0,05 et 0,1 sont appliqués. L'influence du coefficient de frottement sur la courbe force-déformation axiale est très faible (Figure E-4). Les  $\sigma_y$  et  $H$  déterminés à partir de l'analyse sans frottement sont retenus.

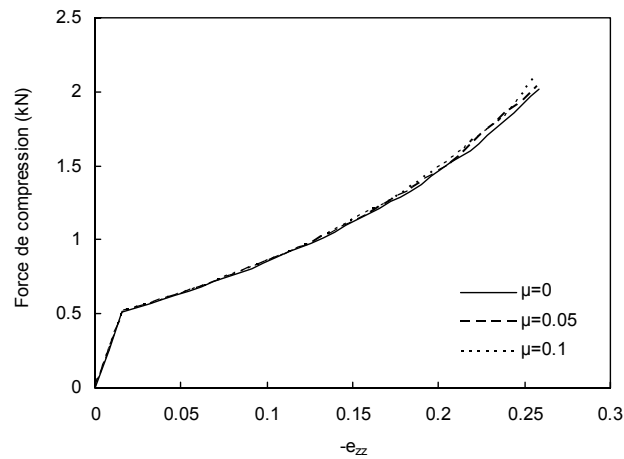


Figure E-4 : Influence du coefficient de frottement  $\mu$  sur la courbe force-déformation axiale.





## Références

- [ARSE03] S. Arsène, J. Bai et P. Bompard  
Hydride embrittlement and irradiation effects on the hoop mechanical properties of Pressurized Water Reactor (PWR) and Boiling-Water Reactor (BWR) Zircaloy cladding tubes : Part I. Hydride embrittlement in stress-relieved, annealed, and recrystallized Zircalloys at 20°C and 300°C  
*Metallurgical and Materials Transactions A*, vol. 34A, pp.553–566, 2003.
- [ARSE97] S. Arsène  
Effet de la microstructure et de la température sur la transition ductile–fragile des Zircaloy hydrurés  
Thèse de doctorat de l'Ecole Centrale Paris, 1997.
- [BAE08] B. Bae, S. Cho et C. Seok  
A study on ring tensile specimens  
*Materials Science and Engineering A*, vol. 483–484, pp. 248–250, 2008.
- [BAKE62] L.J. Baker et L.C. Just  
Studies of metal-water reactions at high temperatures. III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water reaction  
Rapport de l'Argonne National Laboratory, 1962.
- [BALO99] M. Balourdet, C. Bernaudat, V. Basini et N. Hourdequin  
The PROMETRA programme : Assessment of mechanical properties of Zircaloy-4 fuel cladding during an RIA.  
In 15th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Seoul, Korea, pp. II-485–II-492, 1999.
- [BATE00] D. Bates, D. Koss, A. Motta et S. Majumdar  
Influence of specimen design on the deformation and failure of Zircaloy cladding  
In International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, Utah, pp. 1201–1210, 2000.

- [BERN05] C. Bernaudat et P. Pupier  
A new analytical approach to study the rod ejection accident in PWRs.  
In Water Reactor Fuel Performance Meeting. Kyoto, Japan, 2005.
- [BIED78] R.R Biederman  
A study of Zircaloy-4 - steam oxidation kinetics  
Rapport EPRI No. NP-734, 1978.
- [BILL07] M. Billone, Y. Yan et T. Burtseva  
Cladding embrittlement during postulated loss-of-coolant accidents  
Rapport de l'Argonne National Laboratory, 2007.
- [BOSS04] P. Bossis, D. Pêcheur, K. Hanifi, J. Thomazet et M. Blat  
Comparison of the High Burn-Up Corrosion on M5 and Low Tin Zircaloy-4  
In Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, Kobe, Japan, ASTM International, 494-525, 2004.
- [BRAC01] J.C. Brachet, J. Pelchat, D. Hamon, R. Maury, P. Jacques et J.P. Mardon  
Mechanical behaviour at room temperature and metallurgical study of low tin Zy-4 and M5 (Zr-Nb) alloys after oxidation at 1100 C and quenching  
In IAEA Technical Committee Meeting on Fuel behaviour under transient and LOCA conditions, Halden, Norway, pp. 139-158, 2001.
- [BRAC08] J.C. Brachet, V. Vandenberghe-Maillot, L. Portier, D. Gilbon, A. Lesbros, N. Waeckel et J.P. Mardon  
Hydrogen content, pre-oxidation and cooling scenario effects on post-quench microstructure and mechanical properties of Zircaloy-4 and M5 alloys in LOCA conditions  
In Zirconium in the Nuclear Industry: 15th International Symposium, Sun River, USA, 2008.
- [BUNN83] L.R. Bunnell, J.L. Bates et G.B. Mellinger  
Some high-temperature properties of Zircaloy-oxygen alloys  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 116, pp. 219-232, 1983.

- [BUSS09A] V. Busser  
Mécanismes d'endommagement de la couche d'oxyde des gaines de crayons de combustible en situation accidentelle de type RIA  
Thèse de Doctorat de l'INSA de Lyon, 2009.
- [BUSS09B] V. Busser, M.C. Baietto-Dubourg, J. Desquines, C. Duriez et J.P. Mardon  
Mechanical response of oxidized Zircaloy-4 cladding material submitted to a ring compression test  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 384, pp. 87-95, 2009.
- [CABR12] A. Cabrera Salcedo  
Modélisation du comportement mécanique “post-trempe”, après oxydation à haute température des gaines de combustible des réacteurs à eau pressurisée  
Thèse de doctorat de l'École des Mines de Paris, 2012.
- [CHUN79] H.M. Chung et T.F. Kassner  
Pseudobinary zircaloy-oxygen phase diagram  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 84, pp. 327-339, 1979.
- [CHUN80] H.M. Chung et T.F. Kassner  
Embrittlement Criteria for Zircaloy Fuel Cladding Applicable to Accident Situations in Light-Water Reactors  
Summary Report, NUREG/CR-1344, 1980.
- [CORV10] C. Corvalán-Moya, C. Desgranges, C. Toffolon-Masclet, C. Servant et J.C. Brachet  
Numerical modeling of oxygen diffusion in the wall thickness of Low-Tin Zircaloy-4 fuel cladding tube during high temperature (1100–1250°C) steam oxidation  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 400, pp. 196-204, 2010.
- [DELO96] P. Delobelle, P. Robinet, P. Geyer et P. Bouffieux  
A model to describe the anisotropic viscoplastic behaviour of Zircaloy-4 tubes  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 238, pp. 135-162, 1996.

- [DESQ11] J. Desquines, D.A. Koss, A.T. Motta, B. Cazalis et M. Petit  
The issue of stress state during mechanical tests to assess cladding performance during a reactivity-initiated accident (RIA)  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 412, pp. 250-267, 2011.
- [DUFO02] O. Dufourneaud et A.G. Varias  
Elastic-plastic deformation of a nuclear fuel cladding specimen under the internal pressure of a polymer pellet  
In Fifth World Congress on Computational Mechanics, Vienna, Austria, 2002.
- [GENG05] X. Geng  
Etude théorique de faisabilité d'un essai de type EDC (Expansion Due to Compression) sur tube de gaine en alliage de zirconium  
Rapport de stage de l'Ecole Centrale de Paris, 2005.
- [GRAN98] M. Grange  
Fragilisation du Zircaloy-4 par l'hydrogène : comportement, mécanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique  
Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris, 1998.
- [GRIG01] V. Grigoriev, R. Jakobsson et D. Schrire  
Experimental evaluation of critical strain energy density for irradiated cladding under simulated RIA conditions  
In ENS Topfuel 2001, Stockholm, Sweden, 2001.
- [HOBS72] D.O. Hobson et P.L. Rittenhouse  
Embrittlement of Zircaloy clad fuel rods by steam during LOCA transients  
Rapport de l'Oak Ridge National Laboratory, No. ORNL-4758, 1972
- [HOBS73] D.O. Hobson  
Ductile-brittle behavior of Zircaloy fuel cladding  
In Proc. ANS Topical Mtg. on Water Reactor Safety, Salt Lake City, 1973.

- [HOLT70] R.A. Holt  
The beta to alpha phase transformation in Zircaloy-4  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 35, pp. 322-334, 1970.
- [HONG99] H.S. Hong, S.J. Kim et K.S. Lee  
Effect of oxygen content on the beta-quenched microstructure of modified Zircaloy-4  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 265, pp. 108-111, 1999.
- [HOZE08] Z. Hozer, C. Gyori, L. Matus et M. Horvath  
Ductile-to-brittle transition of oxidised Zircaloy-4 and E110 claddings  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 373, pp. 415-423, 2008.
- [HUAN94] J. Huang et S. Huang  
Effect of hydrogen contents on the mechanical properties of Zircaloy-4  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 208, pp. 166-179, 1994.
- [KAWA78] S. Kawasaki, T. Furuta et M. Suzuki  
Oxidation of Zircaloy-4 under High Temperature Steam Atmosphere and Its Effect on Ductility of Cladding  
*Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 15, pp. 589-596, 1978.
- [LEE01] K.W. Lee, S.K. Kim, K.T. Kim et S.I. Hong  
Ductility and strain rate sensitivity of Zircaloy-4 nuclear fuel claddings  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 295, pp. 21-26, 2001.
- [LEIS78] S. Leistikow, G. Schanz et H.V. Berg  
Kinetics and morphology of isothermal steam oxidation of Zircaloy-4 at 700-1300°C  
Rapport KFK No. 2587, 1978.
- [LESA07] M. Le Saux, C. Poussard, X. Averty, C. Sainte-Catherine, S. Carassou, et J. Besson  
High Temperature Expansion Due to Compression Test for the Determination of a Cladding Material Failure Criterion under RIA Loading Conditions  
In Proceedings of the 2007 LWR Fuel Performance Meeting / TopFuel, 2007.

- [LESA08] M. Le Saux  
Comportement et rupture de gaines en Zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en situation accidentelle de type RIA  
Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris, 2008.
- [LESA10] M. Le Saux  
Modélisation par éléments finis des essais de compression d'anneaux et de flexion 3 points post-oxydation/trempe DEZIROX – Intégration des résultats de la thèse de Stern (2007)  
Document technique DEN du Commissariat à l'Energie Atomique, 2009.
- [MA08] X. Ma, C. Toffolon-Masclet, T. Guilbert, D. Hamon et J.C. Brachet  
Oxidation kinetics and oxygen diffusion in low-tin Zircaloy-4 up to 1523 K  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 377, pp. 359-369, 2008.
- [MARD03] J.P. Mardon et N. Waeckel  
Recent data on M5 alloy under LOCA conditions  
In Nuclear Safety Research Conference, Washington DC, Nuclear Regulatory Commission, pp. 141-160, 2003.
- [MENA03] Y. Ménager et A.G. Varias  
Effect of external hydride layer on fuel-cladding deformation during EDC-testing  
In Transactions of the 17<sup>th</sup> International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Prague, Czech Republic, 2003.
- [NEA09] Nuclear fuel behaviour in loss-of-coolant accident (LOCA) conditions  
State-of-the art Report, NEA No. 6846, 2009.
- [OKVI70] G. Ökvist et K. Källström  
The effect of zirconium carbide on the  $\beta \rightarrow \alpha$  transformation structure in Zircaloy  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 35, pp. 316-321, 1970.
- [PAWE74] R.E. Pawel  
Oxygen diffusion in beta Zircaloy during steam oxidation  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 50, pp. 247-258, 1974.

- [PAWE79] R.E. Pawel, J.V. Cathcart et R.A. McKee  
The Kinetics of Oxidation of Zircaloy-4 in Steam at High Temperatures  
Journal of The Electrochemical Society, vol. 126, pp. 1105-1111, 1979.
- [PORT04] L. Portier, T. Bredel, J.C. Brachet, V. Maillot, J.P. Mardon et A. Lesbros  
Influence of long service exposures on the thermal-mechanical behavior of Zy-4 and M5<sup>TM</sup> alloys in LOCA conditions  
In Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, Stockholm, pp. 896-920, 2004.
- [PRAT94] F. Prat  
Etude et modélisation de l'effet de l'hydruration sur le comportement mécanique de composants de structure en Zircaloy-4  
Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris, 1994.
- [RACI05] A. Racine  
Influence de l'orientation des hydrures sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4 hydruré.  
Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique 2005.
- [ROME10] J.E. Romero Ospina  
Texture evolution during beta-quenching of a Zirconium alloy  
Thèse de doctorat de l'University of Manchester, 2010.
- [SAGA84] S. Sagat, H.E. Sills et J.A. Walsworth  
Deformation and failure of Zircaloy fuel sheaths under LOCA conditions  
In Zirconium in the Nuclear Industry: Sixth International Symposium, Vancouver, Canada, pp. 709-733, 1982.
- [SAWA76] A. Sawatsky, G.A. Ledoux et S. Jones  
Oxidation of zirconium during a high-temperature transient  
In Zirconium in the Nuclear Industry, Quebec, Canada, pp. 134-149, 1976.
- [SCHA97] I. Schaeffler  
Modélisation du comportement élasto-viscoplastique anisotrope des tubes de gaine du crayon combustible entre zéro et quatre cycles de fonctionnement en réacteur à eau pressurisée  
Thèse de Doctorat de l'Université de Franche-Comté, 1997.

- [SEOK06] C. Seok, B. Bae, J. Koo et K. Murty  
The properties of the ring and burst creep of ZIRLO cladding  
*Engineering Failure Analysis*, vol. 13, pp. 389–397, 2006.
- [STER07] A. Stern  
Comportement métallurgique et mécanique des matériaux de gainage du combustible REP oxydés à haute température  
Thèse de doctorat de l'École des Mines de Paris, 2007.
- [SUTT09] M.A. Sutton, J.J. Orteu et H. Schreier  
Image Correlation for Shape, Motion and Deformation Measurements: Basic Concepts, Theory and Applications  
ISBN 978-0-387-78746-6, Springer, 2009.
- [URBA78] V. Urbanic et T. Heidrick  
High-temperature oxidation of zircaloy-2 and zircaloy-4 in steam  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 75, pp. 251-261, 1978.
- [VIC] Manuel du logiciel Vic-3D®  
Version 2009, Correlation Solutions.
- [WOO79] O.T. Woo et K. Tangri  
Transformation characteristics of rapidly heated and quenched Zircaloy-4–oxygen alloys  
*Journal of Nuclear Materials*, vol. 79, pp. 82-94, 1979.
- [YASU87] T. Yasuda, M. Nakatsuka et K. Yamashita  
Deformation and fracture properties of neutron–irradiated recrystallized Zircaloy–2 cladding under uniaxial tension  
In 7th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, Strasbourg, France, ASTM STP 939, pp. 734–747, 1987.
- [YVON01] P. Yvon, C. Sainte Catherine, C. Duguay et N. Hourdequin  
Development of new techniques to assess the mechanical behaviour of Zircaloy–4 during an RIA  
In Technical Committee Meeting on Fuel Behaviour Under Transient and LOCA Conditions, Halden, Norway, pp. 111–122, 2001.





## **Caractérisation du comportement à rupture des alliages de zirconium de la gaine du crayon combustible des centrales nucléaires dans la phase post-trempe d'un APRP (Accident de Perte de Réfrigérant Primaire)**

**RESUME :** Dans le cadre des études visant à garantir l'intégrité de la gaine du crayon combustible, EDF est amené à caractériser la ductilité de la gaine après un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). La thèse porte sur la caractérisation du comportement à rupture des gaines en Zircaloy-4 détendu pour lesquels les conditions d'APRP ont été simulées en laboratoire par une oxydation à haute température suivie d'un refroidissement. L'oxydation est effectuée à 1100°C et à 1200°C pour différentes durées ce qui conduit à des niveaux d'oxydation de 3% à 30% d'ECR (Equivalent Cladding Reacted). Deux types de refroidissement sont mis en œuvre : la trempe à l'eau et le refroidissement à l'air. Les gaines oxydées comportent deux couches fragiles, la couche de zircone externe  $ZrO_2$  et la couche  $\alpha(O)$ , et une couche présentant une ductilité résiduelle, la couche ex- $\beta$ .

Les gaines oxydées ont fait l'objet de caractérisations en microscope optique, par analyse à la microsonde et par nano-indentation. Une corrélation entre la teneur en oxygène et la nano-dureté et le module d'Young a été proposée.

L'essai Expansion due à la Compression (EDC) a été développé avec une instrumentation par stéréocorrélation d'images puis a été utilisé pour caractériser le comportement mécanique des gaines oxydées. Le comportement des gaines oxydées a été étudié à partir de l'analyse des courbes macroscopiques de l'essai EDC et à partir des observations des échantillons rompus ou pré-déformés.

Un scénario de rupture des gaines oxydées a été proposé. Ce scénario a été validé d'une part par la réalisation d'essais sur gaines sablées ne comportant que la couche ex- $\beta$  et d'autre part par la modélisation de l'essai par la méthode des éléments finis. Un critère de rupture des gaines oxydées a par ailleurs été établi. La modélisation du comportement et le critère de rupture proposés ont été validés par la modélisation des essais de compression d'anneau.

**Mots clés :** Zircaloy-4, Accident de Perte de Réfrigérant Primaire, oxydation à haute température, Expansion Due à la Compression, éléments finis

## **Characterization of fracture behavior of zirconium alloys for fuel rod cladding of nuclear power plants in the post-quench stage of a LOCA (Loss of Coolant Accident)**

**ABSTRACT:** In order to guarantee the integrity of nuclear fuel rod cladding, it is necessary for EDF to characterize the ductility of cladding after a Loss of Coolant Accident (LOCA). The thesis is about the characterization of the fracture behavior of cold-worked stress-relieved Zircaloy-4 claddings which have undergone LOCA conditions simulated in laboratory by a high temperature oxidation followed by a cooling. The high temperature oxidation is carried out at 1100°C and 1200°C with different times, which leads to different oxidation levels varying from 3% to 30% ECR (Equivalent Cladding Reacted). The high temperature oxidation is followed by two types of cooling: water quench and air cooling. The oxidized claddings contain two fragile layers - the outer zirconium oxide  $ZrO_2$  layer and the middle  $\alpha(O)$  layer, and a layer which can have residual ductility - the inner ex- $\beta$  layer.

Characterizations by means of optical microscopy, electron probe micro analysis and nano-indentation have been carried out on the oxidized claddings. A correlation between the oxygen concentration and the nano-hardness and the Young's modulus has been proposed.

The Expansion Due to Compression (EDC) test has been developed with an instrumentation of stereo digital image correlation, and then used to characterize the mechanical behavior of the oxidized claddings. The behavior of the oxidized claddings has been studied via macroscopic EDC test curves and observations of fractured or pre-deformed test samples.

A fracture scenario of the oxidized claddings has been proposed. The fracture scenario has then been validated via EDC tests on oxidized claddings whose  $ZrO_2$  and  $\alpha(O)$  layers have been removed, and via finite element modeling of EDC tests. Moreover, a fracture criterion has been established. The mechanical behavior modeling and the proposed fracture criterion have been validated by modeling of ring compression test.

**Keywords :** Zircaloy-4, Lose of Coolant Accident, high temperature oxidation, Expansion due to Compression test, finite element modeling